

Temperatur- und winkelabhängiger Magnetotransport in $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Heterostrukturen

DISSERTATION

zur Erlangung des mathematisch-naturwissenschaftlichen Doktorgrades

„Doctor rerum naturalium“

der Mathematisch-Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät

der Universität Augsburg



vorgelegt von

Sven Esser

aus Göttingen

Augsburg, 2021

Mitglieder der Prüfungskommission:

Referent: Prof. Dr. Philipp Gegenwart,
Lehrstuhl Experimentalphysik VI, Universität Augsburg

Koreferent: Prof. Dr. Manfred Albrecht,
Lehrstuhl Experimentalphysik IV, Universität Augsburg

Weitere Mitglieder der Prüfungskommission:

Prof. Dr. Ulrich Eckern,
Lehrstuhl Theoretische Physik II, Universität Augsburg

Priv.-Doz. Dr. Hans-Albrecht Krug von Nidda,
Lehrstuhl Experimentalphysik V, Universität Augsburg

Tag der mündlichen Prüfung: 22. Juni 2021

*„Es gibt keine Probleme.
Es gibt nur ungefundene Lösungen!“*

JENS-DIRK REICH

Abstract

By using a self-constructed metal-organic aerosol deposition chamber we have grown thin film heterostructures of the perovskites SrRuO_3 and SrIrO_3 on $(001)_c$ oriented SrTiO_3 substrates. X-ray diffraction and transmission electron microscopy were used to check the phase purity of the heterostructures, whereas the growth of smooth surfaces was examined by atomic force microscopy. The orientation of an easier magnetization direction perpendicular to the film surface was found with SQUID magnetometry, indicating an easy-axis direction perpendicular to the surface. Compared to the ferromagnetic ordering temperature $T_C = 150\text{ K}$ of epitaxially strained SrRuO_3 thin films [1] the ordering temperature of the heterostructure $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ reduces with decreasing number of repetitions of the bilayer structure $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$.

Temperature- and angle-dependent Hall effect measurement showing in addition to the ordinary and extraordinary Hall effect an additional contribution which was identified as the topological Hall effect. The formation of Néel-type skyrmions at the interface between SrRuO_3 and SrIrO_3 below 80 K could be deduced from this extra contribution. These show large stability against a magnetic field twisted out of the sample surface, but do not show any directional dependence of the magnetic field rotation in relation to the current direction. The skyrmion stability depends on the temperature- and field-dependence of the two independent contributions of the extraordinary Hall effect [2] which show a clearly distinguishable switching behavior.

These two independent channels contribute also to the anisotropic magnetoresistance (AMR). The temperature and angle-dependence of the AMR could be described in good agreement with the model function setted up. Rotating the magnetic field from the out-of-plane direction parallel and perpendicular to the current demonstrate the strong magnetic anisotropy. The magnetic easy axis is rotated from the sample normal and turns towards the out-of-plane direction by applying stronger magnetic fields.

Keywords:

perovskites, iridates, ruthenates, thin films, epitaxial strain, metal organic aerosol deposition, reciprocal space maps, skyrmions, hall effect, anisotropic magnetoresistance

Zusammenfassung

Mittels einer in Eigenbau realisierten Metallorganischen Aerosol Depositions Anlage wurden Heterostrukturen der Perowskite SrRuO_3 und SrIrO_3 auf $(001)_c$ orientierten SrTiO_3 Substrate gewachsen. Durch Röntgenbeugungsexperimente und Transmissionsmikroskopie-Aufnahmen wurde das phasenreine Wachstum der Dünnschichten überprüft, wogegen das Wachstum mit glatten Oberflächen durch Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahmen nachgewiesen wurde. Durch SQUID-Magnetometrie konnte eine bevorzugte Richtung der Magnetisierung senkrecht zur Probenoberfläche beobachtet werden, die auf eine leichte magnetische Achse mit out-of-plane Orientierung hindeutet. Gegenüber der ferromagnetischen Ordnungstemperatur $T_C = 150 \text{ K}$ von epitaktisch verspannten SrRuO_3 Dünnschichten [1] reduziert sich die Ordnungstemperatur der Heterostruktur $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ mit abnehmender Anzahl an Wiederholungen der Bilagenstruktur $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$.

Temperatur- und winkelabhängige Hall-Effekt Messungen zeigen neben dem normalen und anomalen Hall-Effekt Anzeichen für einen zusätzlichen Beitrag, der als topologischer Hall-Effekt identifiziert wurde. Mit Hilfe dessen konnte die Bildung von Néel-Skymionen an der Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 unterhalb von 80 K beobachtet werden. Diese zeigen eine große Stabilität gegenüber einem aus der Probenoberfläche verdrehten Magnetfeld, aber keine Richtungsabhängigkeit der Magnetfeldrotation in Bezug zur Stromrichtung. Die Skymionenstabilität hängt dabei von der Temperatur- und Winkelabhängigkeit der beiden unabhängigen Beiträge zum anomalen Hall-Effekt [2] ab, die ein deutlich unterscheidbares Schaltverhalten zeigen.

Diese zwei unterschiedlichen Leitungskanäle tragen ebenfalls zum anisotropen Magnetwiderstand (AMR) bei, dessen qualitativer Verlauf der Temperatur- und Winkelabhängigkeit mittels einer aufgesetzten Modellfunktion beschrieben werden konnte. Die starke magnetische Anisotropie lässt sich durch Drehungen der Magnetisierung aus der Probennormalen in die Filmebene senkrecht und parallel zum Strom bestimmen. Die magnetische leichte Achse ist dabei aus der Normalen heraus gedreht und richtet sich erst bei stärkeren Magnetfeldern entlang dieser aus.

Schlagwörter:

Perowskite, Iridate, Ruthenate, Dünnschichten, Epitaktische Verspannungen, Metallorganische Aerosol Deposition, Reziproke Raumkarten, Skymionen, Hall-Effekt, anisotroper Magnetwiderstand

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	iii
Tabellenverzeichnis	ix
1. Einleitung	1
2. Physikalische Grundlagen	5
2.1. Übergangsmetalloxide und die elektronische Struktur der Perowskite	7
2.1.1. Die (kubische) Perowskit-Struktur	8
2.1.2. Verzernte Perowskit-Strukturen	10
2.2. Filmwachstum	11
2.2.1. Mikroskopische Prozesse	12
2.2.2. Makroskopische Prozesse – Die Wachstumsmoden	14
2.2.3. Gitterfehlpassung und epitaktische Verspannungen	15
2.3. Magnetismus	17
2.3.1. Magnetische Wechselwirkungen	17
2.3.2. Magnetische Ordnungen	21
2.4. Galvanomagnetische Effekte	29
2.4.1. Der normale Hall-Effekt	30
2.4.2. Der anomale Hall-Effekt	30
2.4.3. Der topologische Hall-Effekt	33
2.4.4. Der Magnetwiderstand	35
3. Dünnsfilmsynthese mittels Metallorganischer Aerosol Deposition (MAD)	41
3.1. Metallorganische Aerosol Deposition	43
3.1.1. Grundlagen	43
3.2. Ellipsometrie - <i>In-situ</i> Wachstumskontrolle	46
3.2.1. Motivation	46
3.2.2. Theoretische Grundlagen der Ellipsometrie	47
3.3. Experimenteller Aufbau	53
3.3.1. Die Depositionskammer	54
3.3.2. Pneumatische Düse und aktiver Shutter	57
3.3.3. <i>In-situ</i> Wachstumskontrolle	59
3.3.4. Temperaturkontrolle	62

4. Experimentelle Methoden	65
4.1. Röntgenmethoden	67
4.1.1. Klassische Röntgenbeugung	68
4.1.2. Röntgenreflektometrie	70
4.1.3. Reziproke Raumkarten	71
4.2. Mikroskopie	73
4.2.1. Rasterkraftmikroskopie	73
4.2.2. Elektronenmikroskopie	74
4.3. Magnetometrie	75
4.4. Elektrischer Transport	77
4.5. Mikrostrukturierung	78
5. Magnetotransport in Heterostrukturen	79
5.1. Motivation und Einführung in die Materialsysteme SrRuO_3 und SrIrO_3	81
5.1.1. Das Materialsystem SrRuO_3	82
5.1.2. Das Materialsystem SrIrO_3	86
5.1.3. Grenzflächeneffekte	88
5.2. Vorarbeiten an $(001)_{\text{pc}}$ orientierten dicken Bilagen	90
5.3. Strukturelle Charakterisierung	96
5.4. Magnetische Eigenschaften	103
5.5. Magnetfeldabhängigkeit des elektrischen Transports	108
5.5.1. Temperaturabhängigkeit im senkrecht orientierten Magnetfeld	110
5.5.2. Einfluss eines zur Probennormalen gedrehten Magnetfeld	120
6. Zusammenfassung und Ausblick	139
A. Transfer-Matrix-Methode - Simulation des Ellipsometriesignals	153
B. Reziproke Raumkarten	155
C. Symmetrische und asymmetrische Magnetotransport-Messungen	159
D. DFT-Rechnungen	161
E. Literaturverzeichnis	165
Danksagung	187

Abbildungsverzeichnis

2.1. Schematische Darstellung der d -Orbitale in oktaedrischer Sauerstoffkoordination	8
2.2. Darstellung der kubischen Perowskit-Struktur	9
2.3. Einfluss der tetragonalen Oktaederverzerrung auf die Besetzung der d -Orbitale	10
2.4. Mikroskopische Prozesse vor und während der Keimbildung	13
2.5. Darstellung der Gibbschen freien Enthalpie am Beispiel für die Keimbildung von Eisen	13
2.6. Schematische Darstellung der Wachstumsmoden	14
2.7. Mögliche Grenzflächen zwischen Dünnsfilm und Substrat	16
2.8. Schematische Darstellung der Erzeugung einer Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung an der Grenzfläche zwischen Ferromagnet und Spin-Bahn gekoppelten System	18
2.9. Aufspaltung der Energiebänder ohne externes Magnetfeld	22
2.10. Schematische Darstellung möglicher Spinordnungen als Skyrmionen	26
2.11. Schematische Darstellung einer Spinanordnung in einem in-plane orientierten Magnetfeld	27
2.12. Schematische Darstellung der Richtung des effektiven magnetischen Feldes B_{em} in einem Skyrmion und einem Bimeron	27
2.13. Schematische Darstellung der extrinsischen Streuprozesse zum Hall-Effekt	31
2.14. Schematische Darstellung der Berry-Phase	33
2.15. Definition der verwendeten Parameter für die Betrachtung des anisotropen Magnetwiderstand	39
3.1. Schematische Darstellung der MAD - Anlage	44
3.2. Schematische Darstellung der ellipsometrischen Winkel	47
3.3. Schematische Darstellung der Reflexion an einer einzelnen Grenzfläche	48
3.4. Schematische Darstellung der Reflexion an einer einzelnen Schicht	49
3.5. Δ - Ψ Trajektorie eines transparenten Dünnsfilms	51
3.6. Darstellung der kompletten MAD - Anlage	53

3.7. Anstellwinkel der Seitenwände der MAD - Anlage	54
3.8. Einstellbarer Bereich des Sauerstoffanteils bei der Verwendung der Massenfluss-Regler zur Sauerstoffkontrolle	56
3.9. Aufbau der pneumatischen Düse	57
3.10. Aufbau des aktiven Shutter-Systems	58
3.11. Ellipsometrie in PMSA Konfiguration	59
3.12. Ellipsometriesignal einer Sr_2RuO_4 Dünnschicht	61
3.13. Schematische Darstellung der Reflexion an einem beidseitig polier- ten Substrat	62
3.14. Oszillationen im zeitlichen Verlauf der reflektierten Intensität . . .	63
3.15. Temperaturvergleich zwischen Pyrometrie und Ellipsometrie . . .	64
4.1. Bragg-Brentano Geometrie und Darstellung von Streuvektor \vec{Q} und den Wellenvektoren von einfallender und gestreuter Welle . .	68
4.2. Herleitung der Bragg-Bedingung	69
4.3. Strahlengang bei der Röntgenreflektometrie	70
4.4. Positionierung eines (un)verspannten Dünnschichtfilms in einer RSM . .	72
4.5. Darstellung des PPMS-Horizontalrotators mit eingebauter Probe .	77
4.6. Schematische Darstellung des Lithographieprozesses	78
5.1. Orthorhombische Kristallstruktur der Perowskite am Beispiel von SrRuO_3	82
5.2. Literaturverhalten der Magnetisierung und des Magnetwiderstands von SrRuO_3	85
5.3. Orthorhombische Kristallstruktur von SrIrO_3	86
5.4. Literaturverhalten der Magnetisierung und des Magnetwiderstands von SrIrO_3	87
5.5. Polare Katastrophe an der Grenzfläche zwischen $A^{2+}B^{4+}O_3$ und $A'^{3+}B'^{3+}O_3$	88
5.6. Wachstum von SrRuO_3 mit optimalen Wachstumsparametern . .	91
5.7. Schichtdickenserie von SrRuO_3	93
5.8. Wachstum und Schichtdickenserie von SrIrO_3	94
5.9. Ellipsometriesignal einer dicken $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Bilage	95
5.10. Strukturelle Untersuchung einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruk- tur mittels Röntgendiffraktometrie, Röntgenreflektometrie und re- ziproker Raumkarte	97

5.11. Strukturelle Untersuchung einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur mittels Röntgendiffraktometrie, Röntgenreflektometrie und reziproker Raumkarte	98
5.12. Vergleich der Ellipsometrie einer Bilage und einer Heterostruktur	100
5.13. Vergleich der XRR Messung einer Bilage und einer Heterostruktur	101
5.14. TEM und AFM Untersuchung einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur	102
5.15. Vergleich der magnetischen Eigenschaften für Magnetfeldorientierungen parallel und senkrecht zur Filmoberfläche	103
5.16. Vergleich der temperaturabhängigen Magnetisierung von unterschiedlichen Multilagen mit einer SrRuO_3 Schicht	104
5.17. Orientierung der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung in einer symmetrischen Heterostruktur	106
5.18. Feldabhängige Magnetisierung einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur	107
5.19. Temperaturabhängiger Widerstand für $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ und $[(\text{SrRuO}_3)_m/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Schichten	108
5.20. Isothermer Hall-Effekt einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur	110
5.21. Anomale Hallkonstante R_s einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ in Abhängigkeit des Längswiderstands ρ_{xx} Heterostruktur	111
5.22. Anpassung des 2-Kanal Modells an den experimentell bestimmten Hall-Effekt an einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur . . .	112
5.23. Feldabhängigkeit und Temperaturabhängigkeit des zusätzlichen Hallbeitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$	114
5.24. Anpassung des 2-Kanal Modells an den experimentell bestimmten Hall-Effekt an einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ Heterostruktur	115
5.25. Vergleich von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zwischen einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur	116
5.26. Isothermer Magnetwiderstand einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ Heterostruktur	117
5.27. Anpassung des Magnetwiderstands mit dem aufgestellten 2-Kanal Modell an einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur	118
5.28. Vergleich der charakteristischen Felder aus Magnetisierung, Hall-Effekt und Magnetwiderstand	119

5.29. Definition der verwendeten Kippwinkel θ und β für die winkelabhängigen Messungen des Hall-Effekts und des Magnetwiderstands	120
5.30. Einfluss eines gedrehten Magnetfelds auf Skyrmionen	121
5.31. Vergleich des winkelabhängigen Hall-Effekts für $T = 10$ K und $T = 60$ K	122
5.32. Temperatur- und Winkelabhängigkeit der normalen Hallkonstanten R_0	123
5.33. Winkelabhängiger Hall-Effekt für Magnetfeldorientierung senkrecht und parallel zum Strom	124
5.34. Winkelabhängiger Hall-Effekt für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur und reines SrRuO_3	125
5.35. Anpassung des 2-Kanal Modells zur Beschreibung des winkelabhängigen anomalen Hall-Effekts	126
5.36. Verlauf der theoretischen Beiträge ρ_{s1} , ρ_{s2} und $\rho_{s1} + \rho_{s2}$ zum anomalen Hall-Effekt und der gemessene Hall-Effekt für zwei Drehwinkel β	127
5.37. Anpassung des 2-Kanal Modells zur Beschreibung des winkelabhängigen anomalen Hall-Effekts für eine Feldorientierung zwischen $\beta = 65^\circ$ und $\beta = 90^\circ$	128
5.38. Winkelabhängigkeit des zusätzlichen Hall Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei 10 K für Feldänderung von -5 T nach 5 T	129
5.39. Temperaturabhängiger Widerstandsverlauf und Magnetwiderstand	130
5.40. Magnetwiderstand für Drehungen in der xz -Ebene für vier Drehwinkel θ und für dieselben Drehwinkel β in der yz -Ebene	131
5.41. Winkelabhängiger Magnetwiderstand bei konstanten Magnetfeld	132
5.42. Winkelabhängiger Magnetwiderstand ρ_{xx} und Hall-Widerstand ρ_{xy} im konstanten Magnetfeld für Drehungen in der yz -Ebene.	133
5.43. Polardiagramm des winkelabhängigen Magnetwiderstand ρ_{xx} bei konstantem Magnetfeld	134
5.44. Anpassung des winkelabhängigen Magnetwiderstand ρ_{xx} und ρ_{xy}	135
5.45. Feldabhängigkeit der winkelabhängigen Fitparameter $\rho_0(\varphi)$, $\rho_1(\varphi)$ und $\rho_2(\varphi)$, sowie des Drehwinkels α_s	135
5.46. Berechnete Feldabhängigkeit der Entwicklungskoeffizienten	136

5.47. (a) Vergleich des Magnetwiderstands senkrecht zur Probenoberfläche, senkrecht zum Stromfluss in der Filmebene und parallel zum Stromfluss in der Filmebene. (b) Berechneter AMR in-plane und out-of-plane	137
A.1. Darstellung des selbst geschriebenen Simulationsprogramms für die Ellipsometrie	154
B.1. Reziproke Raumkarten um verschiedene ($h03$) Reflexe	155
B.2. Reziproke Raumkarten um verschiedene ($h04$) Reflexe	156
B.3. Bestimmung der out-of-plane Gitterkonstante aus der reziproken Raumkarte um den (002) und den (204) Reflex	157
C.1. Symmetrische Hall-Effekt Messungen für Drehung in der yz -Ebene	159
C.2. Asymmetrische Hall-Effekt Messungen für Drehung in der xz -Ebene	160
C.3. Symmetrischer Magnetwiderstand für eine Drehung um $\theta = 35^\circ$ in der xz -Ebene	160
D.1. Bandstruktur von Bulk SrRuO_3 und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]$ Heterostruktur mit Spin-Bahn Kopplung entlang der $[001]$ -Richtung und daraus bestimmte Berry-Krümmung entlang derselben k -Richtungen	161
D.2. Charakter der Bandstruktur einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]$ Heterostruktur mit Spin-Bahn Kopplung entlang der $[001]$ -Richtung für die Übergangsmetallionen der einzelnen Lagen	163

Tabellenverzeichnis

4.1. Wellenlänge der Kupfer $K_{\alpha,i}$ – Linien	67
5.1. Zusammenhang zwischen Depositionsvolumen V_{Dep} und Schichtdicke d	95
5.2. Ermittelte out-of-plane Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}}$ und der in-plane Gitterkonstante $a(100)_{\text{pc}}$ aus der reziproken Raumkarte des (103) Reflexes.	99
5.3. Simulierte Schichtdicken einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur	99
5.4. Curie-Temperaturen T_C verschiedener Multilagen	105
5.5. Temperaturabhängigkeit der berechneten Skyrmionendichte n_{sk} , der normalen Hallkonstante R_0 und der anomalen Hallkonstante R_s	113
5.6. Berechnung der Entwicklungskoeffizienten aus den winkelabhängigen Widerstandsparametern	136
B.1. Ermittelte out-of-plane Gitterkonstante aus den reziproken Raumkarten.	156

Einleitung

Die Funktionalität von modernen Halbleiterstrukturen basiert stark auf Grenzflächeneffekten. So werden beispielsweise bei der modernen nicht-flüchtigen Datenspeicherung in magnetoresistiven RAM (MRAM¹) ferromagnetische Materialien mit herkömmlichen Siliziumschaltungen [3] kombiniert und die Änderung des elektrischen Widerstands durch magnetische Felder für die Unterscheidung binärer Zustände verwendet. In herkömmlichen Halbleiterstrukturen treten wegen den geringen Ladungsträgerdichten unterhalb einer materialspezifischen, lateralen Größe Quanteneffekte auf, welche die gewünschte Funktionalität der Struktur stören können [4, 5]. Um weitere Reduzierungen der Strukturgrößen zu realisieren wird nach neuartigen Materialien und Materialkombinationen gesucht, die zusätzliche Funktionalitäten bieten.

Ein geeigneter Kandidat hierfür stellt die Klasse der perowskitischen Oxide dar, in denen eine Vielzahl von funktionellen Eigenschaften wie Ferro- [6] oder Antiferromagnetismus [7] auftreten. Außerdem kristallisieren sie in ähnlichen Gitterstrukturen, wodurch qualitativ hochwertige Heterostrukturen mit glatten Grenzflächen erzeugt werden können. Über die gezielte Kombination unterschiedlicher Perowskite kann so die Erzeugung neuartiger Grenzflächenphysik forciert werden. Keunecke *et al.* [8] fanden in Heterostrukturen aus den antiferromagnetischen SrMnO_3 und LaMnO_3 an der Grenzfläche eine ferromagnetische Phase mit deutlich erhöhter Ordnungstemperatur um $T_C = 360$ K.

Ebenfalls können durch einen Symmetriebruch an der Grenzfläche neuartige magnetische Ordnungsphänomene begünstigt werden. Eine dieser Ordnungen stellen magnetische Skyrmionen dar, die aufgrund ihrer Eigenschaften für neuartige

¹engl. Magnetic Random Acces Memory

Datenspeicherung [9–11] immer stärker in den Fokus aktueller Forschung rücken. Hierzu gehören neben der bewussten Erzeugung von Skyrmionen [12] auch die Untersuchung ihrer Transporteigenschaften [13]. Außerdem werden Ansätze verfolgt, mit ihnen neuartiges Rechnen in Schaltkreisen zu etablieren [14–16].

Eine mögliche Materialkombination, in denen sich Skyrmionen an der Grenzfläche ausbilden können, bietet nach Matsuno *et al.* [17] Bilagen aus dem ferromagnetischen SrRuO_3 und dem stark Spin-Bahn gekoppelten SrIrO_3 . An die genutzte Dünnschichtsynthese Methode werden dabei hohe Anforderungen gestellt, da die Grenzflächen zwischen den beiden Perowskiten atomar glatt sein müssen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher eine Depositionsanlage für die Herstellung oxidischer Dünnschichten aufgebaut, die auf der Methode der metallorganischen Aerosol Deposition (MAD) beruht. Durch die atmosphärischen Wachstumsbedingungen grenzt sich diese Technik deutlich von anderen Herstellungsverfahren, wie der gepulsten Laser Deposition (PLD) oder der Molekularstrahlepitaxie (MBE) ab. Die normalerweise genutzte Technik der Beugung hochenergetischer Elektronen bei Reflexion (RHEED) für die Wachstumskontrolle kann daher nicht angewandt werden. Stattdessen wurde eine Wachstumskontrolle mittels optischer Ellipsometrie realisiert.

Aufbau dieser Arbeit

In Kapitel 2 werden die benötigten Grundlagen für das Wachstum dünner Schichten und der auftretenden physikalischen Eigenschaften beschrieben. Ausgehend von einer Einführung in die Klasse der Perowskite werden die Grundlagen des Schichtwachstums genannt. Anschließend werden die magnetischen Eigenschaften hinsichtlich auftretender Wechselwirkungen und möglicher Ordnungsphänomene beschrieben. Den Abschluss des Kapitels bildet eine Einführung in die auftretenden galvanomagnetischen Effekte, den Hall-Effekt und den Magnetwiderstand, die als Grundlage für die spätere Diskussion der Transportmessungen dient.

Die Dünnschichtsynthese mittels metallorganischer Aerosol Deposition wird in Kapitel 3 näher beschrieben. Dazu werden zunächst die theoretischen Grundlagen für die MAD und der Ellipsometrie betrachtet. Danach erfolgt eine Beschreibung des experimentellen Aufbaus.

Kapitel 4 widmet sich der Vorstellung der verwendeten Charakterisierungsmethoden. Diese reichen von verschiedenen Röntgenbeugungstechniken und Mikroskopiemethoden für die strukturelle Analyse hin zu Messmethoden zur Bestimmung der magnetischen und elektronischen Eigenschaften.

Im Folgenden Kapitel 5 erfolgt zunächst eine Einführung in die Materialsysteme SrRuO_3 und SrIrO_3 , gefolgt von einer Betrachtung möglicher Grenzflächeneffekte. Anschließend werden die Ergebnisse für das Wachstum beider Einzelsysteme vorgestellt, aus denen die optimierten Wachstumsparameter für die Herstellung der gewünschten Heterostrukturen extrahiert wurden. Mittels Strukturanalyse wird das phasenreine und vollverspannte Wachstum der Multilagen überprüft. Im Anschluss erfolgt die Vorstellung und Interpretation der magnetischen Eigenschaften. Zum Abschluss des Kapitels werden der temperaturabhängige und winkelabhängige Magnetotransport präsentiert. Dazu zählt sowohl die Vorstellung des aufgenommen Hall-Effekts und die Einordnung hinsichtlich Skyrmionenbildung als auch die Darstellung und Diskussion des gemessenen Magnetwiderstands mit- samt der aufgesetzten Modellfunktion.

Eine Zusammenfassung der erhaltenen Ergebnisse erfolgt in Kapitel 6. Dabei wird zunächst die Dünnschichtsynthese mit der neu aufgebauten Depositionskammer diskutiert. Danach werden die Hall-Effekt Messungen hinsichtlich der Bildung von Skyrmionen ausgewertet und in den aktuellen Forschungsstand eingeordnet. Die magnetische Anisotropie der Heterostrukturen wird anhand von Magnetwiderstandsdaten analysiert. Zum Abschluss werden mögliche fortführende Forschungsansätze vorgestellt, mit denen zum einen die Anisotropie der Heterostrukturen näher untersucht und zum anderen Skyrmionen direkt abgebildet werden können.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

In Übergangsmetallen mit Perowskit-Struktur sowie in artifiziiell geordneten Heterostrukturen aus ihnen lassen sich durch das komplexe Wechselspiel verschiedenster Freiheitsgrade eine Vielzahl an faszinierenden neuartigen physikalischen Effekten beobachten. Die Synthese in Form von Dünnschichten ermöglicht die Kombination von Materialien mit unterschiedlichsten Eigenschaften, wodurch an den Grenzflächen zwischen diesen neuartige Phasen beobachtet werden können. So erhält man an der Grenzfläche zwischen dem magnetischen $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ und dem ferroelektrischen BaTiO_3 in der ersten Einheitszelle des $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ eine vom Bulk variierende Mn-Valenz, wodurch diese Lage ein unterschiedliches Magnetisierungsverhalten im Vergleich zum restlichen $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ zeigt [18]. In den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Heterostrukturen aus ferromagnetischen SrRuO_3 und stark Spin-Bahn gekoppelten SrIrO_3 wird durch den Symmetriebruch an der Grenzfläche eine Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung induziert [19, 20], wodurch Skyrmionen an der Grenzfläche realisiert werden könnten.

Dieses Kapitel dient der Einführung der physikalischen Grundlagen. Dazu wird zunächst die Perowskit-Struktur der Übergangsmetalle am Prototypsystem SrTiO_3 beschrieben, um anschließend auf das Schichtwachstum und den Einfluss von Epitaxie auf die Verspannung des Films einzugehen. Danach werden die für den Magnetismus verantwortlichen unterschiedlichen Energiebeiträge beschrieben und die verschiedenen Spinordnungen vorgestellt. Den Abschluss des Kapitels bildet eine Betrachtung der galvanomagnetischen Effekte. Dazu zählen diverse Hall-Effekte, wie beispielsweise der normale und der anomale Hall-Effekt, als auch der anisotrope Magnetwiderstand.

2.1. Übergangsmetalloxide und die elektronische Struktur der Perowskite

Übergangsmetalle charakterisieren sich durch teilweise gefüllte oder gerade abgeschlossene d -Schalen. In Verbindung mit Sauerstoff erhält man so die Klasse der Übergangsmetalloxide, in der es durch die teilweise Füllung der d -Orbitale zu einem Wechselspiel unterschiedlicher Freiheitsgrade (beispielsweise Ladungstransfer, Polarisierbarkeit der Orbitale oder Spinstruktur) kommt. Durch dieses Wechselspiel werden viele interessante physikalische Eigenschaften hervorgerufen [21, 22].

Dafür können exemplarisch genannt werden:

- die Hochtemperatursupraleitung mit einer Sprungtemperatur $T_c = 135$ K in $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+x}$ [23],
- der kolossale Magnetowiderstand (CMR $\approx 60\%$) in $\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_x$ [24],
- die unkonventionelle Supraleitung in Sr_2RuO_4 [25],
- das unkonventionelle (Nicht-Fermiflüssigkeits-) Verhalten in der Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands in $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_3$ [26],
- der Metall-Isolator Übergang (MIT) bei $T = 340$ K in VO_2 [27]
- neuartige magnetische Frustration in Honigwaben $A_2\text{IrO}_3$ ($A = \text{Na}, \text{Li}$) [28]
- und das Auftreten von neuartigen topologischen Phasen, wie beispielsweise in $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ [29]

Diese neuartigen Phänomene werden ausschlaggebend durch die Elektronen in den d -Orbitalen des Übergangsmetallions und deren elektronischer Umgebung, wie sie in Abb. 2.1 dargestellt ist, hervorgerufen.

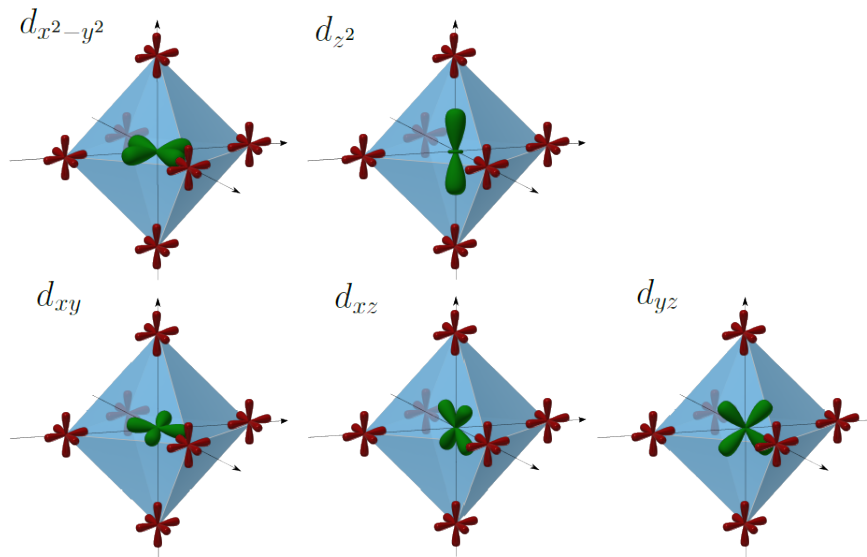


Abb. 2.1.: Schematische Darstellung der d -Orbitale in oktaedrischer Sauerstoffkoordination. Abbildung nach S. Blundell, *Magnetism in Condensed Matter*, Copyright (2001) [30], mit Erlaubnis von Oxford Publishing Limited.

2.1.1. Die (kubische) Perowskit-Struktur

Perowskite lassen sich im einfachsten Fall durch die chemische Summenformel ABO_3 beschreiben. Der A -Platz wird dabei meistens von Erdalkali- und der B -Platz von Übergangsmetallionen besetzt. Die ideale Kristallstruktur der Perowskite kann am Beispiel des in Abbildung 2.2 gezeigten prototypischen Systems $SrTiO_3$ beschrieben werden. Das Übergangsmetallion (Ti) besetzt den B -Platz und befindet sich in der Mitte der kubischen Einheitszelle. Die Sauerstoffionen koordinieren den B -Platz oktaedrisch. Auf den Ecken der Einheitszelle befindet sich der A -Platz, welche durch ein Sr-Ion besetzt ist.

Die oktaedrische Koordinierung der Übergangsmetallionen mit dem Sauerstoff führt dazu, dass die Elektronen in den unter e_g zusammengefassten Orbitalen $d_{x^2-y^2}$ und $d_{3z^2-r^2}$ eine größere räumliche Nähe zu den p -Orbitalen der Sauerstoffatome haben als Elektronen, die sich in den unter t_{2g} zusammengefassten Orbitalen d_{xy} , d_{yz} und d_{xz} befinden. Durch die Coulomb-Abstoßung kommt es in dem resultierenden Kristallfeld des Sauerstoff-Oktaeders zu einer Anhebung der e_g - und einer Absenkung der t_{2g} -Niveaus im Übergangsmetallion. Diese Aufspaltung der Energieniveaus wird auch als Kristallfeldaufspaltung bezeichnet [30].

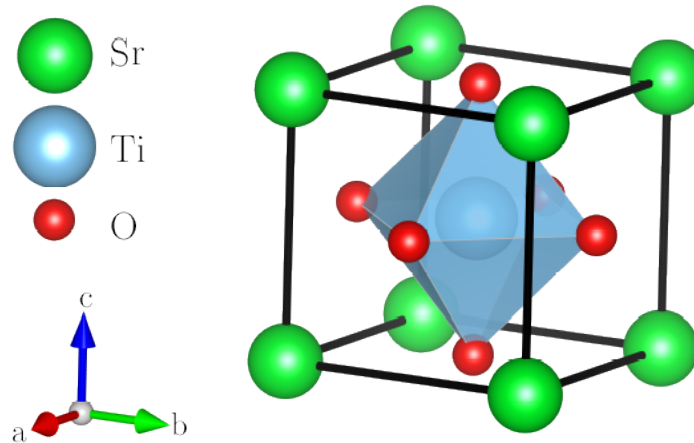


Abb. 2.2.: Darstellung der idealen kubischen Perowskit-Struktur am Beispiel von SrTiO_3 mittels VESTA [31] nach kristallographischen Daten aus ICDD PDF 00-005-0634 [32]. Auf dem zentralen B -Platz befindet sich das Übergangsmetallion Ti, welches von den Sauerstoffionen oktaedrisch umgeben ist. Auf den Ecken des Kubus befinden sich die auf den A -Plätzen lokalisierten Sr-Ionen.

Eine weitere Aufspaltung der Energieniveaus tritt ein, wenn es bedingt durch eine tetragonale Verzerrung zu einer Verringerung der Symmetrie der Sauerstoffoktaeder kommt. Das zweifach entartete e_g -Niveau spaltet dann in zwei einzelne Niveaus auf, wohingegen bei dem dreifach entarteten t_{2g} -Niveau eine Aufspaltung in ein einzelnes und ein zweifach entartetes Niveau stattfindet. Ursächlich für die tetragonale Verzerrung sind im Wesentlichen zwei Effekte:

- Der **Jahn-Teller Effekt** kann in Systemen mit High-Spin Konfiguration eintreten, bei denen sich vier Elektronen in den d -Orbitalen befinden. Durch die spontane Verzerrung des Sauerstoffoktaeders wird so viel Coulombenergie gewonnen, dass die benötigte Energie für die elastische Verzerrung des Oktaeders aufgewogen werden kann [33,34].
- Induziert man **biaxiale Verspannungen**, zum Beispiel beim Wachstum als Dünnschicht durch die Gitterfehlpassung zum Substrat, so kommt es zu einer Änderung des Seitenverhältnis $a : c$, die zu einer Verzerrung der Sauerstoffoktaeder führt [35].

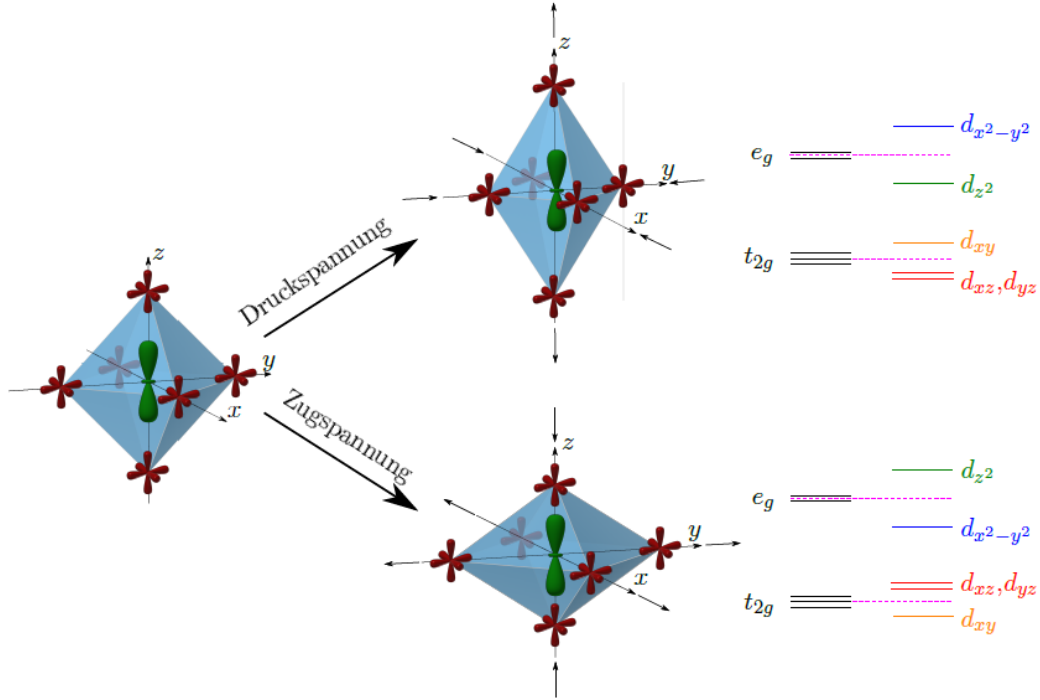


Abb. 2.3.: Einfluss der tetragonalen Oktaederverzerrung am Beispiel des d_{z^2} -Orbitals. Wird das Oktaeder in z -Richtung gestreckt, beispielsweise indem das Substratmaterial eine **Druckspannung** induziert, reduziert sich der Überlapp des d_{z^2} -Orbitals mit den p_z -Orbitalen des Sauerstoffs. Dies führt zu einer Absenkung des Energieniveaus. Bei einer **Zugspannung** dagegen vergrößert sich der Überlapp mit den p_z -Orbitalen des Sauerstoffs, da das Oktaeder in z -Richtung gestaucht wird. Dadurch kommt es zu einer Energieanhebung. Darstellung nach G. F. Dionne, *Magnetic Oxides*, Copyright (2009) [36], mit Erlaubnis von Springer Nature.

2.1.2. Verzernte Perowskit-Strukturen

Neben den zuvor genannten im wesentlichen tetragonalen Verzerrungsmöglichkeiten kann die Perowskit-Struktur auch auf andere Weise verzerrt werden. Ausschlaggebenden Anteil an der Art der Verzerrung haben dabei maßgeblich die Radien r_i der auf den A - und B -Platz befindlichen Ionen. 1926 fand Victor M. Goldschmidt dies als erster heraus [37] und führte einen Toleranzfaktor

$$t = \frac{r_A + r_O}{\sqrt{2}(r_B + r_O)}$$

ein, der als Maß für die Fehlpassung zwischen den AO - und BO_2 -Ebenen verwendet werden kann. Hierbei gilt, dass kubische Perowskite sich bei einem Toleranz-

faktor $t \approx 1$ realisieren lassen. Wird der Unterschied zwischen den Ionenradien größer, so geht man über eine rhomboedrisch verzerrten Struktur (Raumgruppe $R\bar{3}c$, $0,96 < t < 1$) in eine orthorhombische (Raumgruppe $Pnma$, $t < 0,96$) über. Durch Verdrehungen und Verkippungen der Sauerstoffoktaeder wird die Fehlpassung zwischen den AO - und BO_2 -Ebenen durch das Kristallsystem kompensiert.

Bei den verzerrten Perowskiten ist es üblich, die Kristallstruktur mittels einer pseudo-kubischen Einheitszelle zu beschreiben. In dieser wird zwar die Koordinationssymmetrie des B -Platz nicht mehr korrekt dargestellt, jedoch enthält sie genau eine formale Einheit der Summenformel ABO_3 [38].

Ist der Toleranzfaktor größer als 1 ($t > 1$) ist das Kation auf dem A -Platz zu klein, um durch eine Verkippung oder Verdrehung der Oktaeder die Verzerrung zu kompensieren. Stattdessen gehen die Sauerstoffoktaeder von einer Eckverbindung¹ zu einer Seitenverbindung² über, die eine hexagonale Kristallstruktur stabilisiert [39].

2.2. Filmwachstum

Das Wachstum eines Dünnsfilms hängt stark von den verwendeten Wachstumsparametern und dem Substrat ab. Nach Donald L. Smith [40] kann man zwischen sechs Teilschritten unterscheiden. Als *mikroskopische* Prozesse bezeichnet man

- (1) die Adsorption von Molekülen aus der Gasphase auf die Substratoberfläche,
- (2) die Bewegung der Moleküle durch Oberflächendiffusion auf dieser,
- (3) das Ausbilden von Bindungen zwischen den Molekülen und zum Substrat
- (4) und die Bildung kritischer Keimgrößen.

Zu den *makroskopischen* Prozessen sind dagegen

- (5) das Wachstum dickerer Schichten, mit Ausbildung der Morphologie, und
- (6) die Interdiffusion von Filmmaterial in das Substrat und umgekehrt

zu zählen. Im Folgenden sollen, bis auf die Interdiffusion, die einzelnen Teilprozesse näher beschrieben werden. Zudem wird auf die Gitterfehlpassung f des Films

¹engl. corner sharing

²engl. face sharing

zum Substrat eingegangen. Diese gibt die Genauigkeit an, mit der die Einheitszellen von Film und Substrat zueinander passen, und stellt damit ein Maß für den Verspannungsgrad des Films dar.

In dieser Arbeit wird die Metallorganische Aerosol Deposition Technik als Syntheseverfahren verwendet (siehe Abschnitt 3.1). Daher ist im Zusammenhang des Filmwachstums mit dem Ausdruck Molekül immer das oxidierte Metallion MO_x der Präkursoren nach der Pyrolysereaktion gemeint.

2.2.1. Mikroskopische Prozesse

Kommt ein in der Gasphase befindliches Molekül bis auf wenige Ångström in die Nähe der Substratoberfläche, so erfährt es durch Wechselwirkungen mit den Oberflächenatomen eine attraktive Kraft und kann auf die Oberfläche adsorbieren. Thermisch bedingt können die Moleküle ebenfalls vom Substrat zurück in die Gasphase reevaporieren [40]. Für die Abscheidung eines Films muss daher die Kondensationsrate R_r größer sein als die Reevaporationsrate J_v .

Bei der chemischen Gasphasenabscheidung (CVD), einem der MAD sehr ähnlichen Herstellungsverfahren, lässt sich der Nettostrom $J_r = R_r - J_v$ für einkomponentige Systeme durch

$$J_r = J_i \left(\frac{\delta}{1 + \frac{\nu_{od}}{\nu_{or}} \exp \left(-\frac{E_r - E_d}{RT_s} \right)} \right) - J_v(T_s)$$

abschätzen [40]. J_i gibt dabei den Fluss der Moleküle auf die Oberfläche und J_v den Fluss von der Oberfläche an. δ ist die Einfangwahrscheinlichkeit, $\nu_{od/or}$ stellt einen Frequenzfaktor für die Desorption bzw. chemische Bindung, E_r/d die zu den Prozessen zugehörigen molaren Energien, R die Gaskonstante und T_s die Temperatur des Substrats dar.

Deutlich lässt sich der Einfluss der Substrattemperatur auf das Schichtwachstum erkennen. Selbst im häufig auftretenden Aktivierungsfall ($E_r - E_d > 0$) wird eine gewisse Mindesttemperatur für das Filmwachstum benötigt [40]. Beim Filmwachstum mit der MAD ist dies ebenso der Fall, sodass die hohe Substrattemperatur sowohl für die Pyrolysereaktion als auch für die eigentliche Adsorption der Moleküle benötigt wird.

Auf der Oberfläche sind die adsorbierten Moleküle nicht fest an ihre Plätze gebunden, sondern können sich durch Diffusionsprozesse frei bewegen und mit anderen Adsorbaten zu Clustern verbinden oder an ausgewiesenen Stellen, wie

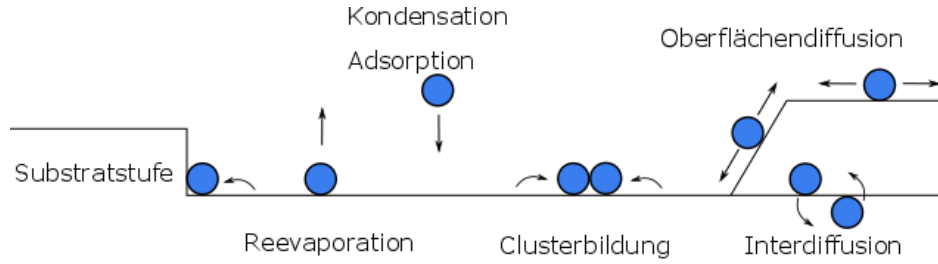


Abb. 2.4.: Schematische Darstellung der vor und während der Keimbildung stattfindenden mikroskopischen Prozesse. Abbildung nach Surf. Sci. **299-300**, A. Venables, *Atomic processes in crystal growth*, Copyright (1994) [41], mit Erlaubnis von Elsevier.

Stufen oder Defekten im Substrat, anlagern, an denen aufgrund der exponierten Lage mehr Bindungen zwischen Substrat und Adsorbat möglich sind [5]. In Abbildung 2.4 sind die möglichen Prozesse schematisch abgebildet.

Für die gebildeten Cluster setzt sich die Gibbsche freie Enthalpie ΔG aus einem Volumenterm ($\propto -r^3$) und einem Oberflächenterm ($\propto r^2$) zusammen. Eine spontane Änderung kann nur entlang $-d(\Delta G)/dr$ erfolgen [40], daher sind erst ab einer kritischen Keimgröße r_{krit} die Molekülcluster stabil. Nach Überschreiten der kritischen Keimgröße wachsen die Cluster solange weiter, wie Material nachgeliefert wird.

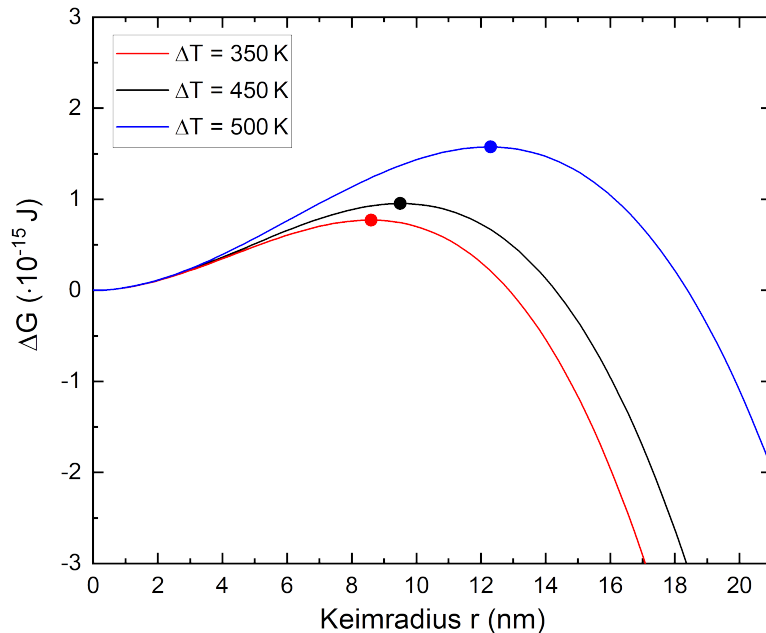


Abb. 2.5.: Darstellung der Gibbschen freien Enthalpie am Beispiel für die Keimbildung von Eisen für drei unterschiedliche Unterkühlungen ΔT . Die Punkte markieren jeweils die kritische Keimgröße r_{krit} . Abbildung nach [42].

2.2.2. Makroskopische Prozesse – Die Wachstumsmoden

Beim Dünnschichtwachstum spielen die Thermodynamik und Kinetik der Clusterbildung eine wichtige Rolle. Die Wachstumsmode, mit der die Dünnschicht aufwächst, wird jedoch im Wesentlichen durch das Verhältnis der Grenzflächenenergie ($\gamma_{S/F}$) zwischen Film und Substrat sowie den Oberflächenspannungen des Films (γ_F) und des Substrats (γ_S) bestimmt [5]. Man unterscheidet zwischen den drei Wachstumsmoden

- **Lagenwachstum** (Frank-van der Merwe Wachstum),
- **Inselwachstum** (Volmer-Weber Wachstum) und
- **Stranski-Krastanov-Wachstum**,

deren charakteristisches Aussehen in Abbildung 2.6 schematisch dargestellt ist.

Beim Lagenwachstum gilt $\gamma_S \geq \gamma_F + \gamma_{S/F}$, d.h. die Bindung zwischen Substrat und adsorbierten Molekülen ist stärker als zwischen den Molekülen untereinander. Dadurch wird zunächst eine Monolage geschlossen bevor die nächste begonnen wird [5]. Diese Wachstumsmode wird daher oft auch als 2D-Wachstum bezeichnet und ist für das Wachstum von künstlich geordneten Überstrukturen zwingend notwendig.

Bei der Volmer-Weber Mode ist die Bindung zwischen den adsorbierten Molekülen stattdessen größer als die Bindung zum Substrat, d.h. $\gamma_S < \gamma_F + \gamma_{S/F}$. Hier wird ein 3D-Wachstum durch Bildung von Inseln also energetisch günstiger, d.h. das Wachstum der nächsten Monolage beginnt, bevor die vorhergehende vollständig geschlossen ist [40].

Das Stranski-Krastanov-Wachstum stellt eine Mischform zwischen Lagen- und Inselwachstum dar. Bei diesem Wachstum versucht sich der Film zunächst durch Lagenwachstum und elastische Verspannung an das Gitter des Substrats anzupassen. Überschreitet die dafür benötigte elastische Verspannungsenergie die Bin-

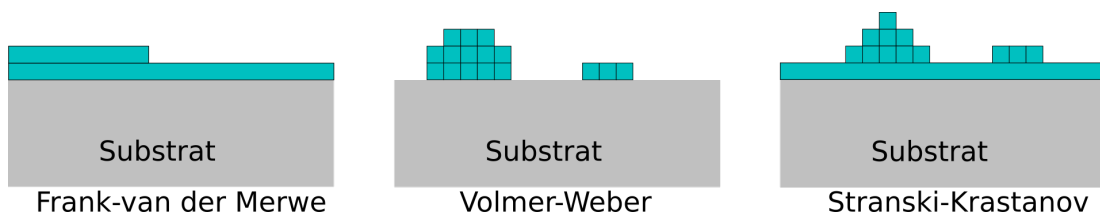


Abb. 2.6.: Schematische Darstellung der Wachstumsmoden. Abbildung nach [42].

dungsenergie zwischen den Molekülen untereinander findet der Übergang vom Lagen- zum Inselwachstum statt [5].

2.2.3. Gitterfehlpassung und epitaktische Verspannungen

Ein Maß wie gut die Dünnschicht auf dem Substratmaterial passt, stellt die sogenannte Gitterfehlpassung f dar, die mit der in-plane Gitterkonstante a_F des Films und a_S des Substrats als

$$f = \frac{a_F - a_S}{(a_F + a_S)/2} \approx \frac{a_F - a_S}{a_S}$$

definiert ist [40]. Je nach Größe der Fehlpassung lassen sich vier verschiedenen Arten von Grenzflächen unterscheiden.

- (1) Unverspannt kohärent,
- (2) inkohärent,
- (3) semikohärent und
- (4) verspannt kohärent

Passen die Gitterkonstanten von Film und Substrat perfekt überein, wie beispielsweise im Fall des homoepitaktischen Wachstums, bildet sich eine kohärente, unverspannte Grenzfläche aus, bei der sich die Periodizität der Kristallstruktur des Substrats in die gewachsene Schicht fortsetzt [40].

Wird die Gitterkonstante a_F des Films im Vergleich zum Substrat größer (kleiner), d.h. gilt für die Gitterfehlpassung $f \lessgtr 0$, wobei die chemische Bindung zwischen Film und Substrat erhalten bleibt, kann sich die Schicht dennoch an die Gitterperiodizität des Substrats durch Verspannungen anpassen. Dafür wird die in-plane Gitterkonstante des Films durch eine Stauchung (Streckung) an die Gitterkonstante des Substrats angepasst [40]. Dies führt zu einer Streckung (Stauchung) der out-of-plane Gitterkonstante d_{oop} des Films. Diese Grenzfläche zählt somit zu den kohärenten Grenzflächen mit Verspannungen.

Eine weitere Erhöhung der Gitterfehlpassung resultiert in einer Vergrößerung der Verspannungsenergie an der Grenzfläche zwischen Film und Substrat. Überschreitet diese einen kritischen Wert, versucht der Film durch die Bildung von sogenannten *Misfit-Versetzungen*, zum Beispiel Stufenversetzungen, die Verspannungsenergie zu verringern. Diese Art der Grenzfläche wird als semikohärent bezeichnet [40].

Inkohärente Grenzflächen treten auf, wenn die Gitterfehlpassung so groß ist, dass der Dünnsfilm die Gitterperiodizität des Substrats auch durch die Ausbildung von Versetzungen nicht übernehmen kann. Eine andere Möglichkeit für die Bildung von inkohärenten Grenzflächen tritt ein, wenn die Bindung zwischen Film und Substrat sehr schwach ist [40].

Wenn die Gitterfehlpassung niedrig ist kann die kristallographische Periodizität des einkristallinen Substrats (Gitterstruktur und Orientierung) sich in den gewachsenen Film fortsetzen. In diesem Fall spricht man von epitaktischem Wachstum des Dünnsfilms. Sind im Film stattdessen unterschiedliche kristallographische Orientierungen vorhanden, so spricht man von polykristallinem Wachstum.

In Abbildung 2.7 sind für das Wachstum eines Dünnsfilms mit einfach kubischer Symmetrie auf einem kubischen Substrat schematisch die möglichen Grenzflächen dargestellt.

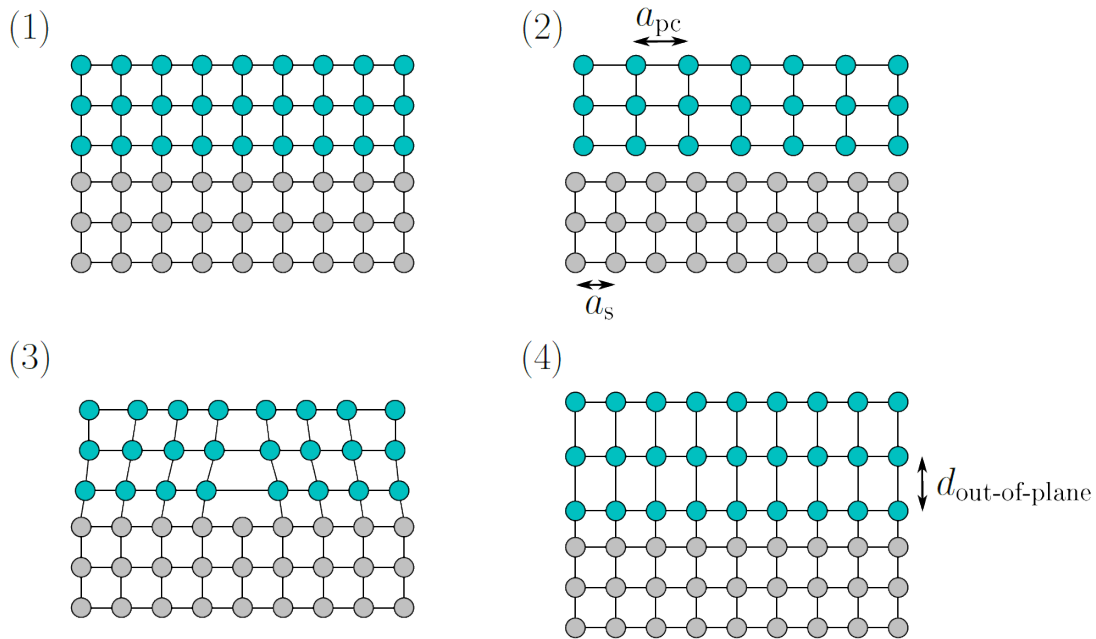


Abb. 2.7.: Darstellung unverspannt kohärenter (1), inkohärenter (2), semikohärenter (3) und verspannt kohärenter (4) Grenzflächen. Abbildung nach [43].

2.3. Magnetismus

2.3.1. Magnetische Wechselwirkungen

Ferromagneten können im Heisenberg Modell durch ein Gitter lokalisierter Spins beschrieben werden. Durch die Minimierung der Gesamtenergie

$$E_{\text{ges}} = E_{\text{ex}} + E_{\text{DMI}} + E_{\text{Z}} + E_{\text{Form}} + E_{\text{Aniso}}$$

ergibt sich die magnetische Konfiguration des Systems. E_{ges} ist dabei eine Summe aus der Austauschwechselwirkung E_{ex} , der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung E_{DMI} , der Zeeman Energie E_{Z} , als auch der Formanisotropie E_{Form} und der Kristallanisotropie E_{Aniso} , die im Folgenden näher betrachtet werden sollen.

Austauschwechselwirkung

Die starke Wechselwirkung zwischen benachbarten magnetischen Momenten, die eine parallele (antiparallele) Ausrichtung der Spins erzeugt, wird als Austauschwechselwirkung bezeichnet und kann mit dem Pauli-Prinzip erklärt werden. Zwei Elektronen können dasselbe Orbital besetzen, wenn sie antiparallele Spins besitzen. Dies führt zu einer Vergrößerung der Coulombabstoßung, da die Wellenfunktionen räumlich überlappen. Bei einer parallelen Spinanordnung können die Elektronen nicht dasselbe Orbital besetzen [30].

Die spinabhängige Energie zwischen benachbarten Spins kann im Festkörper mit dem Heisenberg Modell

$$E_{\text{ex}} = -2 \sum_{i>j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (2.1)$$

beschrieben werden. Dabei ist J_{ij} das Austauschintegral zwischen den Spins \vec{S}_i und \vec{S}_j . Außerdem gilt $\vec{S}_i^2 = S^2$. Oftmals reicht es aus die Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn zu berücksichtigen ($J_{ij} = J$). Für $J > 0$ ergibt sich eine ferromagnetische Spinordnung und für $J < 0$ ordnen die Spins antiferromagnetisch [44].

Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung

In Systemen mit starker Spin-Bahn Wechselwirkung und einer gebrochenen Inversionssymmetrie kommt es zwischen benachbarten Spins \vec{S}_i und \vec{S}_j neben der isotropen Austauschwechselwirkung zu einem zusätzlichen asymmetrischen Austausch, der als **Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung** (DMI) bezeichnet wird [45–47]. Die Inversionssymmetrie kann dabei entweder durch die Kristallstruktur, wie es beispielsweise bei MnSi durch die B20 Kristallstruktur [48], oder durch Grenzflächen zwischen magnetischen und stark Spin-Bahn gekoppelten Systemen [49], wie es in Abb. 2.8 dargestellt ist, erzeugt werden.

Zwischen den Spins \vec{S}_i und \vec{S}_j kommt es zu einem indirekten Austausch über die benachbarten Spin-Bahn gekoppelten unmagnetischen Atome. Die zugehörige Energie lässt sich als

$$E_{\text{DMI}} = - \sum_{i,j} \vec{D}_{ij} \left(\vec{S}_i \times \vec{S}_j \right) \quad (2.2)$$

ausdrücken [19]. Befinden sich zwei benachbarte magnetische Atome an den Gitterpositionen i und j , und befindet sich das vermittelnde Atom an der Position k , dann bezeichnet \vec{r}_{ij} einen Einheitsvektor, der die magnetischen Atome an den

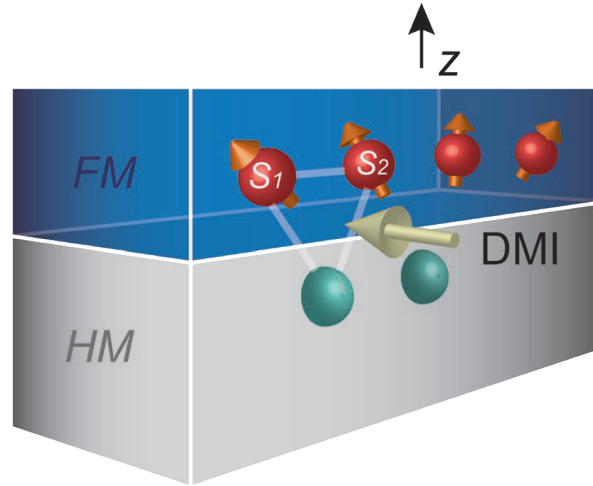


Abb. 2.8.: Schematische Darstellung einer Grenzfläche zwischen einem Ferromagneten (FM) und einem starken Spin-Bahn gekoppelten System (HM). Durch den Symmetriebruch an der Grenzfläche wird eine Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung (DMI) induziert, die zu einer relativen Drehung zwischen den Spins \vec{S}_1 und \vec{S}_2 führt. Abbildung aus Adv. Electron. Mater. **5**, S. Peng *et al.*, *Modulation of Heavy Metal/Ferromagnetic Metal Interface for High-Performance Spintronic Devices*, Copyright (2019) [50], mit Erlaubnis von John Wiley and Sons.

Orten i und j verbindet. \vec{R} beschreibt die senkrechte Verschiebung des vermittelnden Atoms zu \vec{r}_{ij} . Für den Dzyaloshinskii-Moriya Vektor \vec{D}_{ij} gilt damit

$$\vec{D}_{ij} = D \cdot (\vec{R} \times \vec{r}_{ij})$$

und er steht senkrecht auf der Fläche, welche durch die drei Atome auf den Gitterplätzen i , j und k aufgespannt wird [51,52]. Aus $\vec{S}_i \times \vec{S}_j = |\vec{S}_i| \cdot |\vec{S}_j| \sin(\varphi_{ij}) \hat{n}$, wobei φ_{ij} den Winkel zwischen \vec{S}_i und \vec{S}_j angibt und \hat{n} ein Einheitsvektor senkrecht dazu darstellt, wird ersichtlich, dass die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung eine Verdrehung der Spins erzeugt, da diese für $|\varphi_{ij}| = \frac{\pi}{2}$ am größten wird. Die Drehachse der Spins liegt dabei entlang von \vec{D}_{ij} . Die Stärke D der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung ist nach Tôru Moriya [46] proportional zur Stärke der Spin-Bahn Kopplungskonstanten.

Magnetische Anisotropie

Als magnetische Anisotropie wird die Richtungsabhängigkeit der Magnetisierung \vec{M} ohne den Einfluss eines externen Feldes \vec{H} bezeichnet. Die Vorzugsrichtung der Magnetisierung wird hauptsächlich durch die Richtungsabhängigkeit der Spin-Bahn Wechselwirkung bestimmt und hängt unter anderem von der Kristallstruktur, der Kopplung zwischen magnetischen Schichten oder epitaktischen Verspannungen der Lagen ab. Dies wird als **Kristallanisotropie** bezeichnet [53].

Die Anisotropie eines Systems kann mittels des phänomenologischen Ansatz von van Vleck [54] bestimmt werden, bei dem die Anisotropieenergie als Potenzreihenansatz der Richtungskosinusse der Magnetisierung $m_i = \frac{M}{|M|} \cdot \vec{e}_i$ mit $i = x, y, z$ entwickelt wird. Betrachtet man ein System mit uniaxialer Symmetrie entlang der z -Richtung, so ergibt sich die Anisotropie zu

$$\frac{E_{\text{Aniso}}^{\text{uni}}}{V} = -K_2 m_z^2 - K_4 m_z^4 = K_2 + K_2 \sin(\alpha)^2 - K_4 \cos(\alpha)^4$$

mit den Anisotropiekonstanten K_2 und K_4 . Terme höherer Ordnung können vernachlässigt werden. Die Winkel α und φ für die in-plane und out-of-plane Orientierung der Magnetisierung sind wie in Abbildung 2.15 definiert. Aufgrund von

Symmetriebedingungen ergibt sich für ein kubisches System dagegen [30]:

$$\begin{aligned}\frac{E_{\text{Aniso}}^{\text{cubic}}}{V} &= K_4 (m_x^2 m_y^2 + m_y^2 m_z^2 + m_z^2 m_x^2) + K_6 (m_x^2 m_y^2 m_z^2) \\ &= K_4 \left(\sin(\alpha)^2 - \frac{1}{8} \sin(\alpha)^4 (7 + \cos(4\varphi)) \right) \\ &\quad + \frac{K_6}{64} \sin(\varphi)^2 (1 - \cos(2\alpha)) (1 - \cos(4\alpha))\end{aligned}$$

mit den kubischen Anisotropiekonstanten K_4 und K_6 .

Neben den kristallinen Eigenschaften des Systems hat auch die makroskopische Form der Probe einen Einfluss auf die Anisotropie, die als **Formanisotropie** bezeichnet wird. Die langreichweitige Dipol-Dipol Wechselwirkung erzeugt ein Streufeld \vec{H}_d innerhalb der Probe, das als *Demagnetisierungsfeld* bezeichnet wird, da es der Magnetisierung der Probe entgegenwirkt [55]. In einem beliebig geformten Körper hat \vec{H}_d eine explizite Ortsabhängigkeit. Im Spezialfall eines Ellipsoids wird das Streufeld ortsunabhängig und lässt sich mittels

$$\vec{H}_d = -\mathcal{N} \cdot \vec{M}$$

berechnen. \mathcal{N} stellt dabei den *Demagnetisierungstensor* dar, der die Bedingung $\text{Spur}(\mathcal{N}) = 1$ erfüllt. Für die Spezialfälle einer homogen magnetisierten Kugel, eines unendlich langen Drahtes und einer zweidimensionalen unendlich ausgedehnten Platte nimmt \mathcal{N} besonders einfache Formen an [44]:

$$\mathcal{N}_{\text{Kugel}} = \begin{pmatrix} \frac{1}{3} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{3} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{3} \end{pmatrix} \quad \mathcal{N}_{\text{Draht}} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad \mathcal{N}_{\text{Platte}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Der Energiebeitrag durch die Formanisotropie lässt sich anschließend mittels

$$\begin{aligned}\frac{E_{\text{Form}}}{V} &= -\frac{\mu_0}{2} \vec{H}_d \cdot \vec{M} \\ &= \frac{\mu_0}{2} \vec{M} \cdot \mathcal{N} \cdot \vec{M}\end{aligned}$$

bestimmen. Für Dünnschichten kann das Demagnetisierungsfeld sehr gut mit $\mathcal{N}_{\text{Platte}}$ beschrieben werden. In Polarkoordinaten ergibt sich damit

$$\frac{E_{\text{Form}}}{V} = \frac{\mu_0}{2} M \cos(\alpha)^2$$

Zeeman-Wechselwirkung

Legt man ein äußeres Magnetfeld \vec{H} an eine Probe an, richten sich die magnetischen Momente der Probe in Richtung des angelegten Feldes aus. Dieser Effekt wird als Zeeman-Wechselwirkung bezeichnet, dessen Energie durch

$$E_Z = g\mu_B \sum_i \vec{S}_i \cdot \vec{H}$$

berechnet werden kann [30].

2.3.2. Magnetische Ordnungen

Innerhalb eines Festkörpers werden die magnetischen Eigenschaften durch die Ausrichtung der Spins bestimmt. Dabei können sich die Spins sowohl kollinear zueinander ausrichten, wie es beispielsweise beim Ferromagnetismus der Fall ist, als auch nicht kollinear orientiert sein. Diamagnetismus, Paramagnetismus, Ferromagnetismus und die Spinanordnung von Skyrmionen sollen als mögliche magnetische Ordnungen kurz vorgestellt werden. Für eine ausführliche Beschreibung sei an dieser Stelle auf die entsprechende Literatur, z.B. [30], verwiesen.

Diamagnetismus

Diamagnetische Materialien zeichnen sich dadurch aus, dass ohne ein externes Magnetfeld in ihnen keine magnetischen Momente vorhanden sind. Diese werden erst durch das Anlegen eines Feldes in dem Diamagneten induziert und erzeugen eine endliche Magnetisierung. Nach der Lenzschen Regel sind die induzierten Momente dem äußeren Magnetfeld entgegen gerichtet und schwächen dieses somit ab [55]. Die magnetische Suszeptibilität ist negativ ($\chi < 0$) und liegt typischerweise im Bereich von -10^{-6} bis -10^{-4} .

Paramagnetismus

Paramagneten haben im Gegensatz zu Diamagneten auch ohne ein externes Feld magnetisch ungeordnete Momente. Diese ergeben sich beispielsweise durch die Bahnbewegung oder den Spin der Kristallelektronen. Bringt man den Paramagneten in ein externes Magnetfeld richten sich die Dipolmomente in Richtung des äußeren Feldes aus. Paramagneten haben eine positive Suszeptibilität ($\chi > 0$) [55].

Ferromagnetismus

In Ferromagneten wechselwirken benachbarte magnetische Momente stark miteinander, wodurch es zu einer spontanen Gleichausrichtung und damit Magnetisierung kommt, ohne dass ein externes Feld angelegt werden muss. Die Ursache dafür liegt in der quantenmechanischen Austauschwechselwirkung (siehe Kapitel 2.3.1) zwischen den permanenten Momenten des Ferromagneten. Dadurch stellt sich eine langreichweitige räumliche Ordnung der Momente ein [55]. Legt man ein externes Magnetfeld an einen Ferromagneten an, induzieren schon kleine Feldstärken eine große Magnetisierung. Diese kann nach dem Entfernen des externen Feldes zu einem Großteil als remanente Magnetisierung bestehen bleiben.

Erwärmt man den Ferromagneten über die Ordnungstemperatur T_C , die als Curie-Temperatur bezeichnet wird [30], geht die spontane Ordnung zwischen den magnetischen Momenten verloren und die ferromagnetischen Eigenschaften verschwinden.

In Metallen können die magnetischen Momente durch die Verknüpfung mit den frei beweglichen Leitungselektronen delokalisiert sein. Dies ist vor allem bei schmalen d -Bändern der Fall. Werden Spin down Elektronen aus dem Energiebereich $E_F - \delta E$ bis E_F unter Spinumkehr in das Spin up Band im Energiebereich E_F bis $E_F + \delta E$ übertragen, ändert sich die kinetische Energie dieser Elektronen um den Wert [30]

$$\Delta E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} g(E_F) \delta E^2$$

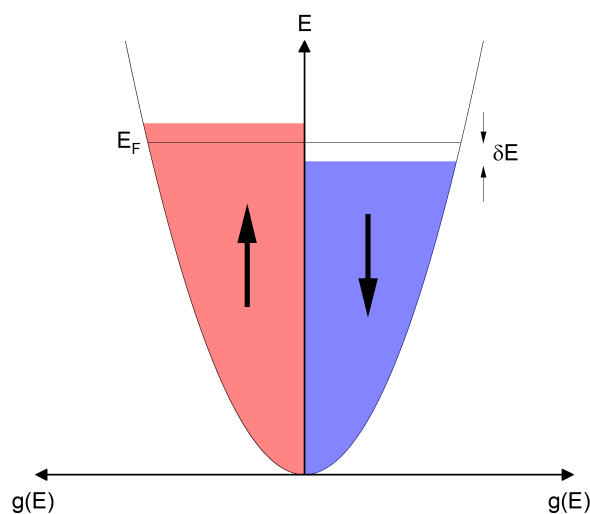


Abb. 2.9.: Aufspaltung der Energiebänder ohne externes Magnetfeld. Abbildung nach S. Blundell, *Magnetism in Condensed Matter*, Copyright (2001) [30], mit Erlaubnis von Oxford Publishing Limited.

$g(E_F)$ stellt dabei die Zustandsdichte an der Fermikante dar. Wegen der parallelen Spinanordnung ändert sich unter der Annahme, dass jedes Elektron ein magnetisches Moment von $1\mu_B$ trägt, die potentielle Energie des Systems um

$$\Delta E_{\text{pot}} = -\frac{1}{2}U (g(E_F) \delta E)^2$$

Der Parameter $U = \frac{\lambda\mu_0}{V}\mu_B^2$ ist dabei ein Maß für die Größe der Coulomb-Energie. Das System ändert seine Gesamtenergie daher um

$$\begin{aligned}\Delta E &= \Delta E_{\text{kin}} + \Delta E_{\text{mag}} \\ &= \frac{1}{2}g(E_F) \delta E^2 \cdot (1 - Ug(E_F))\end{aligned}$$

Ist $\Delta E < 0$, d.h. ist die spinabhängige Aufspaltung der Bänder energetisch günstiger, kann es zu einem spontanen Ferromagnetismus kommen. Das *Stoner*-Kriterium [56]

$$Ug(E_F) \geq 1$$

beschreibt die hierfür notwendige Bedingung an die Coulomb-Energie und die Zustandsdichte an der Fermikante.

Spinspiralen

Betrachtet man das klassische Heisenberg Modell auf einem Bravais-Gitter mit N Gitterplätzen, so lässt sich der Spin \vec{S}_j mittels Fouriertransformation als

$$\vec{S}_j = \sum_{\vec{q}} \vec{S}_{\vec{q}} \cdot e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}_j} \quad (2.3)$$

beziehungsweise die diskreten Fourierkomponenten als

$$\vec{S}_{\vec{q}} = \frac{1}{N} \sum_j \vec{S}_j \cdot e^{-i\vec{q} \cdot \vec{R}_j}$$

darstellen. \vec{q} stellt dabei einen reziproken Gittervektor des betrachteten Bravais-Gitters dar und \vec{R}_j den Ortsvektor an Gitterpunkt j . Setzt man nun in Gleichung (2.1) die Fouriertransformation aus (2.3) für die Spins ein, erhält man für die Austauschenergie den Ausdruck [57]:

$$\begin{aligned}
E_{\text{ex}} &= -2 \sum_{i>j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -2 \sum_{i>j} J_{ij} \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} \vec{S}_{\vec{q}} \cdot e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}_i} \cdot \vec{S}_{\vec{q}'} \cdot e^{i\vec{q}' \cdot \vec{R}_j} \\
&= -2 \sum_{i>j} J_{ij} \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} \vec{S}_{\vec{q}} \cdot \vec{S}_{\vec{q}'} \cdot e^{i(\vec{q}+\vec{q}') \cdot \vec{R}_i} e^{i\vec{q}' \cdot (\vec{R}_j - \vec{R}_i)}
\end{aligned}$$

Die Fourierkomponenten erfüllen die Bedingung

$$\vec{S}_{\vec{q}} = \vec{S}_{-\vec{q}}^*$$

wobei \vec{S}^* das komplex konjugierte von \vec{S} darstellt. Außerdem lässt sich zeigen, dass $\sum_j e^{i(\vec{q}+\vec{q}') \cdot \vec{R}_j} = N \delta_{\vec{q}, -\vec{q}'}$ gilt. Damit ergibt sich

$$E_{\text{ex}} = -2N \sum_{\vec{q}} \vec{S}_{\vec{q}} \cdot \vec{S}_{-\vec{q}} \left(\sum_l J_{0l} \cdot e^{-i\vec{q} \vec{R}_l} \right)$$

mit $\vec{R}_l = \vec{R}_j - \vec{R}_i$. Der Term $\sum_l J_{0l} \cdot e^{-i\vec{q} \vec{R}_l}$ stellt dabei die Fouriertransformation des Austauschintegrals dar, das wegen der symmetrischen Natur der Austauschwechselwirkung die Bedingung [57]

$$J(\vec{q}) = \sum_l J_{0l} \cdot e^{-i\vec{q} \vec{R}_l} = J(-\vec{q})$$

erfüllt. Damit ergibt sich die Energie zu:

$$E_{\text{ex}} = -2N \sum_{\vec{q}} J(\vec{q}) \vec{S}_{\vec{q}} \cdot \vec{S}_{-\vec{q}} \quad (2.4)$$

Die Minimalenergie des Systems

$$E_{\text{ex}} = -2NS^2 J(\vec{Q})$$

ergibt sich für den Spinzustand

$$\vec{S}_n = S \begin{pmatrix} \cos(\vec{Q} \cdot \vec{R}_n + \phi) \sin(\theta) \\ \sin(\vec{Q} \cdot \vec{R}_n + \phi) \sin(\theta) \\ \cos(\theta) \end{pmatrix}$$

der sich mit dem Wellenvektor \vec{Q} beschreiben lässt [58]. Die Orientierung der Spins

dreht sich in Richtung \vec{Q} um den Winkel θ um die Rotationsachse, die entlang der z -Achse angenommen wird, und ϕ stellt einen möglichen Phasenwinkel dar.

Skyrmionen

Skyrmionen stellen eine nicht-triviale Spinstruktur dar, die mittels der topologischen Zahl, der sogenannten Skyrmionenzahl

$$N_{\text{sk}} = \frac{1}{4\pi} \int_A \vec{n}(\vec{r}) \cdot \left(\frac{\partial \vec{n}(\vec{r})}{\partial x} \times \frac{\partial \vec{n}(\vec{r})}{\partial y} \right) dx dy \quad (2.5)$$

definiert werden können. Im Fall von Skyrmionen ergibt sich $N_{\text{sk}} = 1$ [59]. Die Topologie einer magnetischen Struktur kann sich unter kontinuierlichen Transformationen nicht verändern. Das bedeutet, dass ein einzelnes Skyrmion in einem ferromagnetischen Hintergrund nicht zerstört werden kann. Das Skyrmion ist *topologisch* geschützt [60].

Die Spinstruktur eines Skyrmions

$$\vec{n}(\vec{r}) = \begin{pmatrix} \cos \Phi(\varphi) \sin \Theta(r) \\ \sin \Phi(\varphi) \sin \Theta(r) \\ \cos \Theta(r) \end{pmatrix}$$

lässt sich mit der Helizität h und der Vortizität ν über $\Phi(\varphi) = \nu\varphi + h$ charakterisieren [61]. Dabei gibt $\Phi(\varphi)$ den Polarwinkel der Magnetisierung und φ den Polarwinkel des Ortsvektors \vec{r} an. $\vec{r} = (r \cos \varphi, r \sin \varphi)^T$ wird dabei mit polaren Koordinaten beschrieben.

Die Skyrmionenzahl ist über die Polarität p mit der Vortizität ν durch $N_{\text{sk}} = p \cdot \nu$ verknüpft. p zeigt dabei die Richtung des zentralen Spins an. Für $p = +1$ zeigt der Spin in positiver und für $p = -1$ in negativer z -Richtung [60]. Die Vortizität gibt die Drehrichtung der in-plane Magnetisierung an.

Als *Bloch*-Skyrmion bezeichnet man Strukturen mit $h = \pm \frac{\pi}{2}$ und $\nu = 1$, wogegen $h = 0$ oder $h = \pi$ und $\nu = 1$ *Néel*-Skyrmionen darstellen. Spinstrukturen mit $\nu = -1$ stellen sogenannte Antiskyrmionen dar, die beispielsweise in MnSc_2S_4 experimentell nachgewiesen werden konnten [62]. Im Gegensatz zu Skyrmionen sind Antiskyrmionen nicht rotationssymmetrisch. Dadurch können entlang unterschiedlicher Richtungen sowohl ein zu Blochskyrmionen und ein zu Néel-skyrmionen ähnliches Spinprofil beobachtet werden [63]. In Abbildung 2.10 sind die Spinstrukturen von Bloch-, Néel- und Antiskyrmionen dargestellt.

In chiralen magnetischen Systemen, in denen sich Skyrmionen bilden, existie-

ren im Allgemeinen drei charakteristische Energieskalen. Die Stärkste ist die ferromagnetischen Austauschwechselwirkung (J), die Mittlere wird durch die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung (D) und die Schwächste durch die (kubische) Anisotropie (K) beschrieben [61]. Für Temperaturen unterhalb T_C bilden die Spins in einem begrenzten Bereich im Temperatur-Magnetfeld-Phasendiagramm ein sogenanntes Skyrmionengitter aus. Die Spinstruktur des Skyrmionengitters lässt sich durch eine Superposition von drei Spinspiralen als

$$\vec{n} = \vec{n}_{\text{uniform}} + A \sum_{j=1}^3 \left(\vec{n}_{j1} \cos(\vec{Q}_j \cdot \vec{r}) + \vec{n}_{j2} \sin(\vec{Q}_j \cdot \vec{r}) \right)$$

beschreiben, und formen ein dreieckiges Gitter [64]. Die Spinspiralen erfüllen dabei die folgenden Bedingungen [61]:

$$\begin{aligned} \vec{Q}_1, \vec{Q}_2, \vec{Q}_3 &\perp \vec{H} \\ \vec{Q}_1 + \vec{Q}_2 + \vec{Q}_3 &= 0 \end{aligned}$$

Liegt die Magnetisierung innerhalb der Filmebene, bilden sich keine herkömmlichen Skyrmionen aus. Stattdessen können sich aus dem homogen magnetisierten

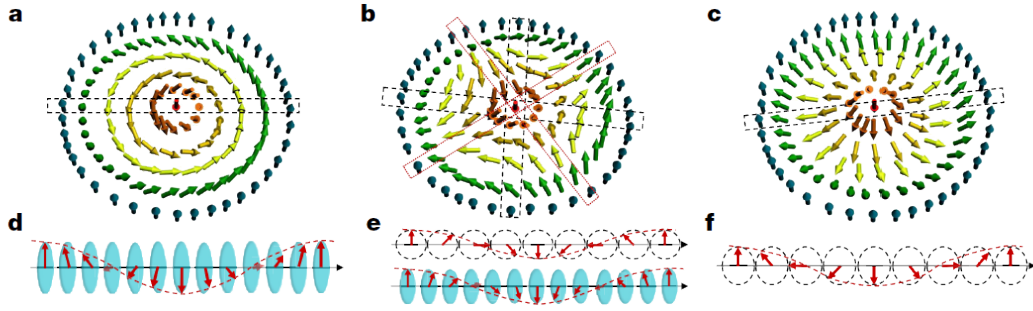


Abb. 2.10.: Schematische Darstellung möglicher Skyrmionen: (a) Blochskyrmion, (b) Antiskyrmion und (c) Néelskyrmion. Querschnitte entlang der gestrichelt eingezeichneten Richtung zeigt die spiralförmige Spinanordnung, aus der sich die Skyrmionen aufbauen. Für Blochskyrmionen ergibt sich eine helikale Spirale (d), wogegen Néelskyrmionen eine zykloidale Spirale (f) haben. Bei Antiskyrmionen dreht die Magnetisierung je nach Richtung wie eine helikale (schwarze Querschnitte) oder eine zykloidale Spinspirale (rote Querschnitte). Abbildung aus Nature **548**, A. K. Nayak *et al.*, *Magnetic antiskyrmions above room temperature in tetragonal Heusler materials*, Copyright (2017) [63], mit Erlaubnis von Springer Nature.

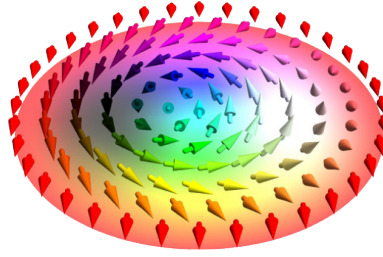


Abb. 2.11.: Schematische Darstellung einer möglichen Spinanordnung in einem parallel zur Filmebene orientierten Magnetfeld. In diesem kann sich durch die Kombination zwischen einem Meron und einem Antimeron mit antiparalleler Ausrichtung des Spins in der Mitte ein *Bimeron* bilden, das teilweise auch als *in-plane Skyrmion* bezeichnet wird. Abbildung aus Physics Reports **895**, B. Göbel *et al.*, *Beyond skyrmions: Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles*, Copyright (2021) [65], mit Erlaubnis von Elsevier.

Hintergrund heraus lokal Meron-Antimeron Paare bilden. Dabei lassen sich Meronen (Antimeronen) durch eine halbzahlige Skyrmionenzahl $N_{\text{sk}} = 1/2$ ($N_{\text{sk}} = -1/2$) beschreiben. Bilden nun ein Meron und ein Antimeron mit unterschiedlicher Polarität p ein Paar, so hat die resultierende Spinstruktur eine ganzzahlige Skyrmionenzahl $N_{\text{sk}} = \pm 1$ und wird als *Bimeron* (siehe Abb. 2.11) bezeichnet.

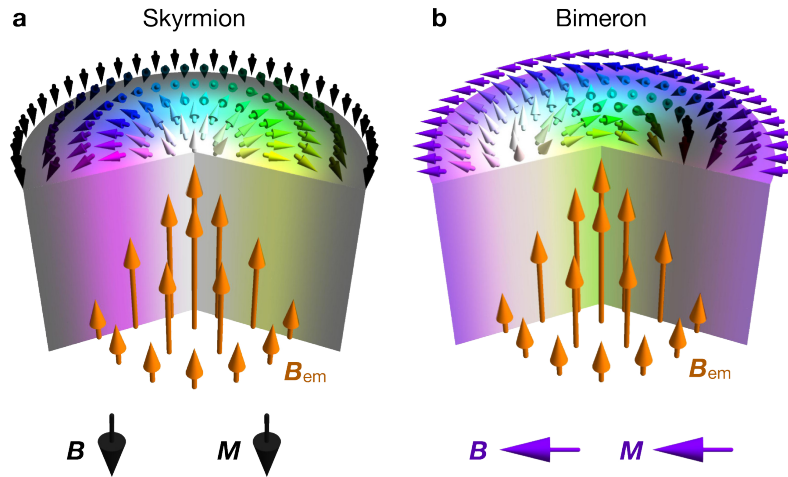


Abb. 2.12.: Schematische Darstellung der Richtung des effektiven magnetischen Feldes B_{em} in einem Skyrmion (a) und einem Bimeron (b). Obwohl das externe Magnetfeld B und die Magnetisierung M bei Bimeronen parallel zur Filmebene orientiert sind, ist das effektive magnetische Feld B_{em} wie bei Skyrmionen out-of-plane orientiert. Abbildung aus Physics Reports **895**, B. Göbel *et al.*, *Beyond skyrmions: Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles*, Copyright (2021) [65], mit Erlaubnis von Elsevier.

net [65,66]. Bimeronen werden somit durch dieselbe Skymionenzahl wie Bloch- oder Néel-Skymionen beschrieben, und können daher als Äquivalent zu ihnen in einem in-plane magnetisierten Ferromagneten betrachtet werden [60]. In der Literatur ist auch die Bezeichnung als *in-plane Skymion* [67] gebräuchlich, da man durch eine 90° Drehung aller magnetischen Momente eines herkömmlichen Skymions um eine Achse in der Filmebene die Spinstruktur des Bimerons erzeugt werden kann.

Im Gegensatz zu Néel-Skymionen, bei denen das externe Magnetfeld $\mu_0 H$ und die Magnetisierung M senkrecht zur Probenoberfläche orientiert ist, sind bei Bimeronen das externe Magnetfeld und die Magnetisierung in der Filmebene ausgerichtet. Dagegen steht das effektive magnetische Feld B_{em} des Bimerons senkrecht zur Filmebene und besitzt damit dieselbe Orientierung wie bei Skymionen (siehe Abb. 2.12). Dies führt dazu, dass der von Bimeronen hervorgerufene topologische Hall-Effekt (siehe Kapitel 2.4.3) in denselben Elementen ρ_{xy} des Widerstandstensors wie bei Skymionen auftritt [65].

2.4. Galvanomagnetische Effekte

In der aktuellen Forschung werden mit dem Begriff *galvanomagnetische Effekte* sämtliche Effekte zusammengefasst, die durch das Anlegen eines externen Magnetfelds $\mu_0 H \neq 0 \text{ T}$ eine Änderung des elektrischen Widerstands bewirken. Als wichtige Beispiele können neben dem anisotropen Magnetwiderstand (AMR) [68] die Entdeckung des Riesenmagnetowiderstands (GMR) 1988 [69, 70] und des Tunnelmagnetowiderstands (TMR) 1975 [71] genannt werden, mit denen eine Verkleinerung der Strukturgrößen von Festplatten und damit eine Erhöhung der Speicherkapazität selbiger möglich war.

Magnetoresistive Effekte können jedoch nicht nur parallel, sondern auch senkrecht zum elektrischen Stromfluss auftreten. Einen der bekanntesten Vertreter dieser Klasse stellt der 1879 von Herbert Edwin Hall entdeckte normale Hall-Effekt [72] dar, der zum Beispiel in Sensoren für die Messung von Magnetfeldern verwendet wird.

In topologisch nicht-trivialen Materialien (Skyrmionenzahl $N_{\text{sk}} \neq 0$) lässt sich der auftretende Hall-Widerstand ρ_{xy} als

$$\rho_{xy} = \rho_{\text{OHE}} + \rho_{\text{AHE}} + \rho_{\text{THE}}$$

beschreiben, wobei ρ_{OHE} durch den normalen Hall-Effekt (OHE), ρ_{AHE} durch den anomalen Hall-Effekt (AHE) und ρ_{THE} durch den topologischen Hall-Effekt (THE) hervorgerufen wird. Die unterschiedlichen Komponenten des Hall-Effekts sollen in den kommenden Abschnitten näher beschrieben werden.

Anschließend wird ein allgemeinerer Blick auf den positiven und negativen Magnetwiderstand geworfen. Zum Abschluss wird der anisotrope Magnetwiderstand näher betrachtet.

2.4.1. Der normale Hall-Effekt

Legt man an einer Probe ein externes Magnetfeld \vec{B} senkrecht zum Stromfluss \vec{J} an, werden die bewegten Ladungsträger durch die Lorentzkraft abgelenkt. Für einen in x -Richtung fließenden Strom J_x und ein dazu senkrecht orientiertes statisches Magnetfeld H_z ergibt sich die Bewegungsgleichung [55] zu

$$m \frac{d^2 \vec{r}}{dt^2} + \frac{m}{\tau} \cdot \frac{d\vec{r}}{dt} = q \left(\vec{E} + \left(\vec{v} \times \vec{B} \right) \right)$$

mit der Driftgeschwindigkeit \vec{v} , der Ladung q der bewegten Ladungsträger ($q = -e$ für Elektronen und $q = e$ bei Löchern), der isotrop angenommenen Elektronenmasse m und der phänomenologischen Streuzeit τ .

Im stationären Fall vereinfacht sich diese zu

$$\frac{m}{\tau} \cdot \frac{d\vec{r}}{dt} = q \left(\vec{E} + \left(\vec{v} \times \vec{B} \right) \right)$$

Mit $J_x = \frac{nq^2\tau}{m} E_x$ kann das Transversalfeld E_y , durch das die Lorentzkraft kompensiert wird, in der Form

$$E_y = \frac{1}{qn} B_z J_x$$

beschrieben werden. Der normale Hall-Widerstand ist definiert als

$$\rho_{\text{OHE}} := \frac{E_y}{J_x} = R_0 \cdot B_z$$

mit der normalen Hallkonstante $R_0 = 1/(nq)$, aus dem sich die Art der Ladungsträger (q) sowie die Ladungsträgerdichte (n) bestimmen lässt [55].

2.4.2. Der anomale Hall-Effekt

In ferromagnetischen Materialien tritt neben dem normalen Hall-Effekt ein zusätzlicher Beitrag zum Hallwiderstand auf. Phänomenologisch lässt sich dieser zusätzliche Beitrag als

$$\rho_{\text{AHE}} = R_s \cdot M_z(B)$$

beschreiben, wobei $M_z(B)$ die Magnetisierungskomponente senkrecht zur Filmoberfläche darstellt und R_s der anomalen Hallkonstante ist [73]. Durch die Abhängigkeit von der Magnetisierung der Probe weist der anomale Hallwiderstand eine starke Temperatur- und Feldabhängigkeit auf. Experimentell zeigte sich, dass der normale und der anomale Hall-Effekt das gleiche oder unterschiedliche Vor-

zeichen haben können.

Durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung erfolgt die Kopplung zwischen Magnetisierung $M_z(B)$ und Strom J_x , was zu einer asymmetrischen Streuung der Ladungsträger führt. Für die Abhängigkeit der anomalen Hallkonstante R_s vom Längswiderstand ρ_{xx} gibt es drei verschiedene Beträge. Das **Skew-Scattering** [74] und das **Side-Jump-Scattering** [75] zählen dabei zu den *extrinsischen* Streumechanismen, wogegen durch die **Berry-Phase** [76] ein *intrinsischer* Beitrag zur anomalen Hallkonstante hervorgerufen wird. Im Folgenden sollen diese drei Mechanismen kurz vorgestellt werden. Für eine detailliertere Betrachtung wird auf die entsprechende Fachliteratur, z.B. [77, 78] verwiesen.

Skew-Scattering

Durch die Spin-Bahn-Kopplung wird bei der Streuung von spinpolarisierten Elektronen an einem Streuzentrum die Symmetrie zwischen den möglichen Streurichtungen, beispielsweise in Abbildung 2.13(a) die Streuung des Elektrons nach links oder rechts, aufgehoben und eine Richtung bevorzugt. Dies führt zu einem asymmetrischen Streuquerschnitt und das gestreute Elektron erhält bei der Streuung einen Impuls senkrecht zur ursprünglichen Bewegungsrichtung [78]. Dieser Prozess wird als Skew-Scattering bezeichnet. Der Winkel δ , um den das Elektron abgelenkt wird, ist typischerweise in der Größenordnung von 10^{-2} rad [79]. Das

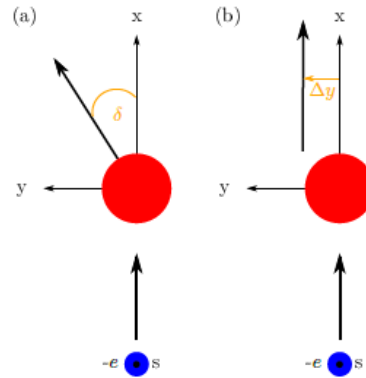


Abb. 2.13.: Schematische Darstellung der extrinsischen Streuprozesse, die zum anomalen Hall-Effekt beitragen. (a) Beim Skew-Scattering wird das Elektron mit Spin s um den Winkel δ abgelenkt. (b) Beim Side-Jump-Scattering wird das Elektron um Δy versetzt. Abbildung nach Y. Shiomi, *Anomalous and Topological Hall Effects in Itinerant Magnets* (Springer Theses), Copyright (2013) [78], mit Erlaubnis von Springer Nature.

Skew-Scattering wurde als erstes von Smit [80,81] betrachtet, der den Zusammenhang zwischen Längs- und Querwiderstand zu $\rho_{\text{AHE}} \propto \rho_{xx}$ berechnet hat.

Side-Jump-Scattering

Der zweite extrinsische Streumechanismus ist das Side-Jump-Scattering und entspricht einer seitlichen Versetzung um Δy des Elektrons bei der Streuung. Die Richtung der Versetzung ist wegen der Spin-Bahn-Kopplung asymmetrisch, wodurch Elektronen mit unterschiedlichen Spins unterschiedlich gestreut werden [79]. Der Side-Jump Mechanismus ist im Gegensatz zum Skew-Scattering ein rein quantenmechanischer Effekt. Physikalisch betrachtet ruft die lokale Verzerrung der Wellenfunktion durch das Streuzentrum die Versetzung um Δy hervor [75].

Folgt man der Berechnung von Smit für die Streuung eines freien Elektrons in einem kurzreichweitigen Potential mit Spin-Bahn-Kopplung [81] und berechnet die gestreute Wellenfunktion mittels Störungsrechnung zweiter Ordnung, ergibt sich für Bandelektronen eine seitliche Versetzung um $\Delta y \approx 10^{-11}$ m. Mit der Versetzung Δy kann der Hall-Widerstand ρ_{xy} berechnet werden. Dabei ergibt sich, dass der anomale Beitrag $\rho_{\text{AHE}} \propto \rho_{xx}^2$ ist [75]. In Abbildung 2.13(b) ist das Side-Jump-Scattering schematisch dargestellt.

Berry-Phase

Im Modell der Berry-Phase wird die adiabatische Änderung eines Systems entlang eines Pfades \mathcal{C} im gewählten Parameterraum \mathcal{R} betrachtet. Entlang eines geschlossenen Pfades ändert sich die Phase γ_n des betrachteten Zustands um den Wert

$$\gamma_n = \oint_{\mathcal{C}} d\mathcal{R} \cdot \mathcal{A}_n(\mathcal{R}) = 2\pi n \quad n \in \mathbb{N}$$

wobei $\mathcal{A}_n(\mathcal{R})$ als Berry-Vektorpotential und γ_n als Berry-Phase bezeichnet wird. In einem dreidimensionalen Parameterraum lassen sich diese in der folgenden Vektorform beschreiben:

$$\Omega_n(\mathcal{R}) = \nabla_{\mathcal{R}} \times \mathcal{A}_n(\mathcal{R}) \tag{2.6}$$

$$\gamma_n = \int_{\mathcal{S}} d\mathcal{S} \cdot \Omega_n(\mathcal{R}) \tag{2.7}$$

Dabei stellt \mathcal{S} eine beliebige Oberfläche dar, die von dem Pfad \mathcal{C} eingeschlossen ist. $\Omega_n(\mathcal{R})$ ist die sogenannte Berry-Krümmung und kann intuitiv als das Magnetfeld in dem betrachteten Parameterraum betrachtet werden [83].

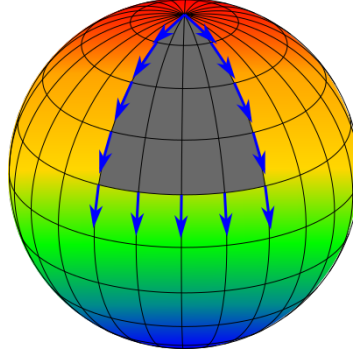


Abb. 2.14.: Schematische Darstellung des Paralleltransports eines Zustands entlang eines geschlossenen Pfades auf einer gekrümmten Oberfläche. Abbildung nach J. Appl. Phys. **115**, K. Everschor-Sitte und M. Sitte, *Real-space Berry phases: Skyrmion soccer (invited)*, Copyright (2014) [82], mit Erlaubnis von AIP Publishing.

In Bezug auf den anomalen Hall-Effekt wählt man als Parameterraum den Impulsraum. In diesem ergibt sich der folgende Zusammenhang zwischen Hall-Leitfähigkeit σ_{xy} und Berry-Krümmung [77, 78]:

$$\sigma_{xy} = -\frac{e^2}{\hbar} \left(\frac{1}{2\pi} \right)^3 \sum_n \int d^3k f(\epsilon_n(\vec{k})) \Omega_n^z(\vec{k}) \quad (2.8)$$

mit den Eigenwerten $\epsilon_n(\vec{k})$. Für den anomalen Hallwiderstand lässt sich zum Längswiderstand ρ_{xx} eine quadratische Abhängigkeit $\rho_{\text{AHE}} \propto \rho_{xx}^2$ ermitteln [78].

Aus den drei vorgestellten Modellen ergibt sich für den anomalen Hallwiderstand der Zusammenhang

$$\rho_{\text{AHE}} \propto (a\rho_{xx} + b\rho_{xx}^2 + c\rho_{xx}^2) \cdot M_z(B)$$

wobei a , b und c Faktoren darstellen, mit denen die Stärke der einzelnen Mechanismen berücksichtigt werden.

2.4.3. Der topologische Hall-Effekt

Wenn die mittlere freie Weglänge l der Elektronen kleiner ist als die Größe der Spinstruktur, wie es beispielsweise bei Skyrmionen auftritt, ist eine Betrachtung der Berry-Phase im Realraum sinnvoll [78].

Als Beispiel für eine Berry-Phase im Realraum dient hier die Bewegung eines freien Elektrons durch eine räumlich oder zeitlich inhomogene magnetische Struktur $\vec{M}(\vec{r}, t)$ mit konstanter Amplitude $M = |\vec{M}(\vec{r}, t)|$.

Damit ergibt sich die Schrödingergleichung zu

$$i\hbar |\psi\rangle = \left(\frac{\vec{p}^2}{2m} \mathbb{1} - J\vec{\mu}\vec{M}(\vec{r},t) \right) |\psi\rangle \quad (2.9)$$

mit der ferromagnetischen Kopplungskonstanten J und dem magnetischen Moment $\vec{\mu}$ des Elektrons [82]. Durch eine unitäre Transformation U , mit der die Quantisierungsrichtung aus der globalen \vec{z} -Achse in die lokale Magnetisierungsrichtung $\vec{M}(\vec{r},t)$ gedreht wird, ergeben sich in der Schrödingergleichung (Gl. (2.9)) das Berry-Vektorpotential \mathcal{A}^e und ein skalares Potential \mathcal{V}^e

$$\begin{aligned} \mathcal{A}^e &= \left(\frac{i\hbar}{q} \right) U^\dagger \nabla U \\ \mathcal{V}^e &= - \left(\frac{i\hbar}{q} \right) U^\dagger \partial_t U \end{aligned}$$

Aus diesen Potentialen können sowohl das effektive elektrische Feld (\vec{E}_{em}) und das effektive magnetische Feld (\vec{B}_{em}) über die Beziehung

$$\begin{aligned} \vec{B}_{\text{em}} &= \nabla \times \mathcal{A}^e \\ \vec{E}_{\text{em}} &= -\nabla \mathcal{V}^e - \partial_t \mathcal{A}^e \end{aligned}$$

berechnet werden. Diese effektiven Felder wirken auf das Elektron bei der Bewegung durch die inhomogene magnetische Umgebung.

Die räumlich langsam variierende magnetische Struktur $\vec{n}(\vec{r}) = \vec{M}(\vec{r}) / |\vec{M}(\vec{r})|$ kann mittels des Raumwinkels

$$d\Omega = \vec{n}(\vec{r}) \cdot \left(\frac{\partial \vec{n}(\vec{r})}{\partial x} \times \frac{\partial \vec{n}(\vec{r})}{\partial y} \right) dx dy$$

zwischen drei benachbarten Spins beschrieben werden. Mittels Integration über den Einheitskreis erhält man die Skymionenzahl N_{sk} (siehe Gl. 2.5) die angibt, wie oft $\vec{n}(\vec{r})$ den Einheitskreis umhüllt. Das effektive magnetische Feld \vec{B}_{em} ist proportional zu der Skymionendichte n_{sk}

$$B_{\text{em}} = \phi_0 \cdot n_{\text{sk}}$$

mit dem magnetischen Flussquant $\phi_0 = \frac{h}{e}$.

Der Beitrag zum Hall-Effekt, der durch dieses effektive Magnetfeld hervorgerufen wird, lässt sich zu

$$\rho_{\text{THE}} = PR_0 \cdot B_{\text{em}} = PR_0 \cdot \phi_0 \cdot n_{\text{sk}} \quad (2.10)$$

berechnen und wird als topologischer Hall-Effekt bezeichnet. Dabei ist R_0 die normale Hallkonstante und P die Spinpolarisation der Leitungselektronen [17].

2.4.4. Der Magnetwiderstand

Neben dem Effekt auf den transversalen Widerstand ρ_{xy} lässt sich auch im longitudinalen Widerstand ρ_{xx} der Einfluss eines externen Magnetfelds beobachten. Dies lässt sich über den Magnetwiderstand beschreiben, der sich über

$$\text{MR} = \frac{\rho(B) - \rho(B = 0 \text{ T})}{\rho(B = 0 \text{ T})} = \frac{\Delta\rho(B)}{\rho_0}$$

aus der Widerstandsänderung bestimmen lässt.

Positiver Magnetwiderstand

Der positive Magnetwiderstand (PMR) wird durch die Lorentzkraft hervorgerufen. In einer phänomenologischen Betrachtung befinden sich die Elektronen zwischen zwei Stößen wegen dem angelegten Magnetfeld auf Landau-Bahnen, die mit der Zyklotronfrequenz $\omega_c = eB/m$ durchlaufen werden. In Stromrichtung reduziert sich dadurch im Vergleich zum feldfreien Fall die mittlere freie Weglänge und es kommt zu einer Vergrößerung des Widerstands [55]. Mit der *Kohler*-Regel kann die relative Feldabhängigkeit des positiven Magnetwiderstands in der Form

$$\frac{\Delta\rho(B)}{\rho_0} = F\left(\frac{B}{\rho_0}\right)$$

beschrieben werden [84]. $F\left(\frac{B}{\rho_0}\right)$ stellt dabei einen materialspezifischen funktionalen Zusammenhang dar.

Negativer Magnetwiderstand

In ferromagnetischen Materialien kann eine Absenkung des elektrischen Widerstands beobachtet werden. Bei seiner Erklärung dieses Phänomens für die Übergangsmetalle traf Nevill Francis Mott [85] die Annahmen, dass der elektrische

Strom vorwiegend durch Elektronen in s Bändern transportiert wird, der Widerstand aber durch die Streuung der s Elektronen in freie Zustände innerhalb der d Bänder an der Fermikante erzeugt wird. Unterhalb der Curie-Temperatur kommt es zur Aufspaltung der d Bänder zwischen den Majoritäts- und Minoritätszuständen. Dabei sinken die Zustände für die Majoritätsspins unter die Fermikante ab, sodass Elektronen mit einer Spinorientierung parallel zur Magnetisierung nicht in freie d Zustände gestreut werden können. Eine Vergrößerung der Spinordnung im Ferromagneten ist demnach die Ursache für die Abnahme des elektrischen Widerstands und damit für den negativen Magnetwiderstand (NMR).

Die Vergrößerung der Spinordnung kann auch durch ein externes Magnetfeld hervorgerufen werden. Dieser Effekt ist isotrop, also unabhängig von der relativen Orientierung zwischen Strom, Magnetisierung und externem Magnetfeld. Mott berücksichtigt in seinem Modell jedoch nicht ausreichend den Beitrag durch inelastische Streuprozesse zum Widerstand. I.A. Campbell und A. Fert entwickelten dafür ein Zweistrom-Modell, in dem sie den Gesamtwiderstand als Parallelschaltung aus dem Widerstand der Majoritäts- und der Minoritätsspins bestimmten [86].

Anisotroper Magnetwiderstand

1857 fand William Thomson [87] in Ferromagneten eine Abhängigkeit zu der relativen Orientierung zwischen der Magnetisierungsrichtung $\vec{m} = \frac{\vec{M}}{|\vec{M}|}$ und der Richtung der Stromdichte $\vec{j} = \frac{\vec{J}}{|\vec{J}|}$. Typischerweise findet man für $\vec{m} \parallel \vec{j}$ ein Maximum im Widerstand ρ_{\parallel} und einen minimalen Widerstand ρ_{\perp} für $\vec{m} \perp \vec{j}$ [88,89]. Durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung kommt es zu einer asymmetrischen Ladungsverteilung der lokalisierten Momente, wodurch sich unterschiedliche Streuquerschnitte für die Streuung der Leitungselektronen parallel zur Magnetisierung und senkrecht dazu ergeben.

Folgt man dem Ansatz von Birss [90] können die Komponenten ρ_{ij} des Widerstandstensors $\underline{\rho}$, der das elektrische Feld \vec{E} mit der Stromdichte \vec{J} über $\vec{E} = \underline{\rho}\vec{J}$ verknüpft [91], phänomenologisch über eine Potenzreihe der einzelnen Komponenten der Magnetisierung m_i entwickelt werden:

$$\rho_{ij} = a_{ij} + \sum_{k=1}^3 a_{kij} m_k + \sum_{k,l=1}^3 a_{kl ij} m_k m_l + \dots$$

Die Entwicklungskoeffizienten a_{ij} müssen dabei nach dem Neumannschen Prinzip die Symmetrie des Kristalls wiedergeben [92]. Das bedeutet, dass die Entwick-

lungskoeffizienten invariant unter allen Symmetrieoperationen \mathcal{S} der zugehörigen Punktgruppe sind [93]. In der Matrixdarstellung können die Entwicklungskoeffizienten über den Zusammenhang

$$\begin{aligned}
a_{ij} &= \sum_{o,p=1}^3 S_{io} S_{jp} a_{op} \\
a_{kij} &= \sum_{o,p,q=1}^3 \det(\mathcal{S}) S_{kq} S_{io} S_{jp} a_{qop} \\
a_{kl ij} &= \sum_{o,p,q,l=1}^3 \det(\mathcal{S})^2 S_{kq} S_{lr} S_{io} S_{jp} a_{qrop} \\
a_{klm ij} &= \sum_{o,p,t,q,l=1}^3 \det(\mathcal{S})^3 S_{kq} S_{lr} S_{mt} S_{io} S_{jp} a_{qrtop} \\
a_{klmni j} &= \sum_{o,p,t,n,q,l=1}^3 \det(\mathcal{S})^4 S_{kq} S_{lr} S_{mt} S_{nu} S_{io} S_{jp} a_{qrtnuop}
\end{aligned}$$

mit den Generatoren S der Symmetrietransformationen der Punktgruppe bestimmt werden [91]. Der symmetrische Anteil des Widerstandstensors stellt dabei den generalisierten Magnetwiderstand und der antisymmetrische Beitrag den Hall-Effekt dar. Geht man von einer idealen kubischen Kristallstruktur mit Punktsymmetrie O_h aus, und berücksichtigt bei der Potenzreihe Terme vierter Ordnung, lässt sich der Widerstandstensor in der folgenden Form angeben [94, 95]:

$$\begin{aligned}
\underline{\rho}^{\text{cubic}} = & A \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + B \cdot \begin{pmatrix} 0 & m_z & -m_y \\ -m_z & 0 & m_x \\ m_y & -m_x & 0 \end{pmatrix} + C_1 \cdot \begin{pmatrix} m_x^2 & 0 & 0 \\ 0 & m_y^2 & 0 \\ 0 & 0 & m_z^2 \end{pmatrix} \\
& + C_2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & m_x m_y & m_x m_z \\ m_x m_y & 0 & m_y m_z \\ m_x m_z & m_y m_z & 0 \end{pmatrix} + D \cdot \begin{pmatrix} 0 & m_z^3 & -m_y^3 \\ -m_z^3 & 0 & m_x^3 \\ m_y^3 & -m_x^3 & 0 \end{pmatrix} \\
& + E_1 \cdot \begin{pmatrix} m_x^4 & 0 & 0 \\ 0 & m_y^4 & 0 \\ 0 & 0 & m_z^4 \end{pmatrix} + E_2 \cdot \begin{pmatrix} m_y^2 m_z^2 & 0 & 0 \\ 0 & m_x^2 m_z^2 & 0 \\ 0 & 0 & m_x^2 m_y^2 \end{pmatrix} \\
& + E_3 \cdot \begin{pmatrix} 0 & m_x m_y m_z^2 & m_x m_y^2 m_z \\ m_x m_y m_z^2 & 0 & m_x^2 m_y m_z \\ m_x m_y^2 m_z & m_x^2 m_y m_z & 0 \end{pmatrix}
\end{aligned}$$

Um eine tetragonale Verzerrung entlang der pseudo kubischen $[001]_{\text{pc}}$ Richtung im Widerstandstensor zu beschreiben, geht man vom kubischen System aus und addiert einen zusätzlichen Term:

$$\underline{\rho}^{\text{tetra}} = \underline{\rho}^{\text{cubic}} + \Delta \underline{\rho}$$

wobei sich der zusätzliche Term als

$$\begin{aligned} \Delta \underline{\rho} = & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & a \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & bm_z & 0 \\ -bm_z & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ & + \begin{pmatrix} c_3 m_z^2 & 0 & c_2 m_x m_z \\ 0 & c_3 m_z^2 & c_2 m_y m_z \\ c_2 m_x m_z & c_2 m_y m_z & c_1 m_z^2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & d_1 m_z^3 & -d_2 m_y m_z^2 \\ -d_1 m_z^3 & 0 & d_2 m_x m_z^2 \\ d_2 m_y m_z^2 & -d_2 m_x m_z^2 & 0 \end{pmatrix} \\ & + \begin{pmatrix} e_2 m_y^2 m_z^2 + e_4 m_z^4 & e_3 m_x m_y m_z^2 & e_6 m_x m_y^2 m_z + e_7 m_x m_z^3 \\ e_3 m_x m_y m_z^2 & e_2 m_x^2 m_z^2 + e_4 m_z^4 & e_6 m_x^2 m_y m_z + e_7 m_y m_z^3 \\ e_6 m_x m_y^2 m_z + e_7 m_x m_z^3 & e_6 m_x^2 m_y m_z + e_7 m_y m_z^3 & e_5 m_x^2 m_y^2 + e_1 m_z^4 \end{pmatrix} \end{aligned}$$

darstellen lässt. Die Entwicklungskoeffizienten A, \dots, E_3 und a, \dots, e_7 ergeben sich als nichtverschwindende Linearkombination der Komponenten des galvanomagnetischen Tensors und sind beispielsweise in [93] aufgelistet.

Der generalisierte Magnetwiderstand ρ_{xx} und der Hall-Effekt ρ_{xy} können nun über die Beziehungen

$$\begin{aligned} \rho_{xx} &= \vec{j} \underline{\rho}^{\text{tetra}} \vec{j} \\ \rho_{xy} &= \vec{t} \underline{\rho}^{\text{tetra}} \vec{j} \end{aligned} \quad (2.11)$$

ermittelt werden, wobei $\vec{t} = \vec{n} \times \vec{j}$ eine Richtung senkrecht zum Stromdichtefluss \vec{j} darstellt und \vec{n} die Richtung der Probennormalen angibt (siehe Abb. 2.15).

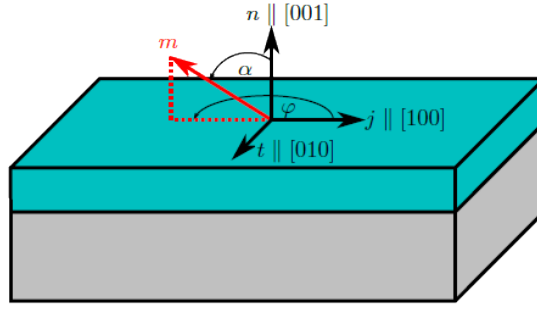


Abb. 2.15.: Orientierung der Magnetisierungsrichtung \vec{m} in Bezug zur Stromrichtung \vec{j} und Probennormalen \vec{n} . Die Lage in der Filmebene ist durch den Winkel ϕ und die senkrecht zur Filmebene durch den Winkel α festgelegt.

Für einen Stromfluss j parallel zur $[100]$ -Richtung ergeben sich der generalisierte Magnetwiderstand und der Hall-Effekt zu:

$$\begin{aligned}\rho_{xx}(\vec{m}) &= A + C_1 \cdot m_x^2 + E_1 \cdot m_x^4 + c_3 \cdot m_z^2 + e_4 \cdot m_z^4 + (E_2 + e_2) \cdot m_y^2 m_z^2 \\ &= \rho_0(\varphi) + \rho_1(\varphi) \cos^2 \alpha + \rho_2(\varphi) \cos^4 \alpha\end{aligned}\quad (2.12)$$

$$\begin{aligned}\rho_{xy}(\vec{m}) &= -(B + b) \cdot m_z - (D + d_1) \cdot m_z^3 + C_2 \cdot m_x m_y + (E_3 + e_3) \cdot m_x m_y m_z^2 \\ &= \rho_3(\varphi) - \rho_4(\varphi) \cos \alpha + \rho_5(\varphi) \cos^2 \alpha - \rho_6(\varphi) \cos^3 \alpha - \rho_7(\varphi) \cos^4 \alpha\end{aligned}\quad (2.13)$$

Der Winkel α gibt dabei die Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Probenoberfläche an und die Magnetisierung in der Filmebene wird in den Faktoren ρ_j berücksichtigt. Diese ergeben sich zu:

$$\begin{aligned}\rho_0(\varphi) &= (A + C_1 \cos^2 \varphi + E_1 \cos^4 \varphi) \\ \rho_1(\varphi) &= (c_3 + E_2 + e_2 - [C_1 + E_2 + e_2] \cos^2 \varphi + [E_2 + e_2 - 2E_1] \cos^4 \varphi) \\ \rho_2(\varphi) &= (e_4 - E_2 - e_2 - [E_2 + e_2] \cos^2 \varphi + E_1 \cos^4 \varphi) \\ \rho_3(\varphi) &= \frac{1}{2} C_2 \sin(2\varphi) \\ \rho_4(\varphi) &= B + b \\ \rho_5(\varphi) &= \frac{1}{2} (E_3 + e_3 - C_2) \sin(2\varphi) \\ \rho_6(\varphi) &= D + d_1 \\ \rho_7(\varphi) &= \frac{1}{2} (E_3 + e_3) \sin(2\varphi)\end{aligned}$$

Kapitel 3

Dünnsfilmsynthese mittels Metallorganischer Aerosol Deposition (MAD)

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden mit der Metallorganischen Aerosol Deposition hergestellt, welche in diesem Kapitel näher beschrieben werden soll. Zunächst wird der grundlegende Prozess der MAD erläutert und anschließend erfolgt eine Betrachtung der verwendeten *in-situ* Wachstumskontrolle mit Ellipsometrie, bei der zum einen auf die theoretischen Grundlagen eingegangen und zum anderen die Interpretation der charakteristischen Messgrößen beschrieben wird. Abschließend erfolgt eine Darstellung des im Rahmen dieser Arbeit realisierten Aufbaus solch einer MAD-Anlage mit *in-situ* Wachstumskontrolle.

3.1. Metallorganische Aerosol Deposition

Die Metallorganische Aerosol Depositions-Methode (MAD-Methode) ist ein unkonventionelles vakuumfreies Verfahren, mit dem dünne Filme von Metalloxiden höchster Qualität [96,97] hergestellt werden können. Erstmals erwähnt wurde diese Technik noch als aerosolbasierte MOCVD Technik 1990 in [98]. Das Wachstum verschiedenster komplexer Metalloxide, wie z.B. Manganate [99], Ruthenate [100], als auch erster Doppelperowskite [43,101] und vieler weiterer Verbindungen konnte mittels der MAD-Methode realisiert werden.

Jungbauer *et al.* gelang es nach der Installation eines Hochpräzisionspumpensystems und eines Ellipsometriesystems zur Wachstumskontrolle die Ruddlesden-Popper Serie des Strontiumtitanates $\text{Sr}_{n+1}\text{Ti}_n\text{O}_{3n+1}$ atomlagengenau mit verschiedener Anzahl n an Gliedern zu wachsen [102]. Unter anderem konnten sie auf diese Weise Dünnschichten mit $n > 3$ herstellen, welche so auf natürliche Weise nicht mehr vorkommen [103]. Mit dem Pumpsystem ist es zudem möglich, künstlich geordnete Heterostrukturen zu wachsen, um bei diesen den möglichen Einfluss von Grenzflächen auf die elektronischen und magnetischen Eigenschaften zu untersuchen [104,105].

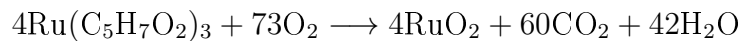
3.1.1. Grundlagen

Der grundlegende Prozess des Filmwachstums bei der MAD-Methode beruht auf dem Prinzip der chemischen Pyrolysereaktion. Metallorganische Komplexe, die sogenannten Präkursoren, werden im gewünschten molaren Verhältnis der Metallionen im organischen Lösungsmittel *N,N*-Dimethylformamid (DMF) gelöst. Als Präkursoren werden beispielsweise Acetylacetonat- oder Tetramethylheptadionat-Komplexe verwendet. In dieser Arbeit wurden Strontium-, Ruthenium- und Iridium-Acetylacetonate genutzt, die von der Firma Sigma-Aldrich bezogen wurden. Diese Präkursoren liegen in Pulverform vor und weisen eine Reinheit von mindestens 97 % auf.

An einer Seite der Depositionskammer ist eine pneumatische Düse angebracht, deren Düsenöffnung auf den Siliziumkarbid Heizer im Inneren der MAD gerichtet ist. Der schematische Aufbau der Anlage ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Mit einer Messingklammer wird das zu beschichtende Substrat auf dem Siliziumkarbid Heizer befestigt. Anschließend wird das Substrat durch resistives Heizen auf die benötigte Depositionstemperatur T_{Dep} gebracht, welche abhängig von dem gewünschten Filmsystem zwischen 600 °C und 1000 °C liegt. Während des gesamten

Wachstumsprozesses strömt durch die Düse ein Druckluftstrom in Richtung des Substrats.

Hat das Substrat die Depositionstemperatur erreicht, wird von der Lösung ein definiertes Volumen V_{Dep} mit dem Pumpsystem in die pneumatische Düse dosiert. An der Düsenöffnung wird die Lösung durch die anliegende Druckluft in einen feinen Aerosolkegel zerstäubt und in Richtung des Substrats geblasen. Der mittlere Tröpfchendurchmesser im Aerosol liegt bei etwa $20\text{ }\mu\text{m}$ [97]. Auf dem Weg von der Düse zum geheizten Substrat gehen die Tröpfchen im Aerosol in die Gasphase über. Dicht über dem geheizten Substrat erfolgt die Pyrolysereaktion, d.h. die organischen Anteile der Präkursoren und des Lösungsmittels verbrennen. Neben den gewünschten Metalloxiden bilden sich als Nebenprodukte ebenfalls gasförmiges CO_2 und H_2O , wie am Beispiel des verwendeten Ruthenium-Präkursors in der nachfolgenden Reaktion ersichtlich wird:



Aufgrund der hohen Temperatur des Substrats können sich die Nebenprodukte der Reaktion nicht auf diesem anlagern, sondern werden stattdessen mit dem Abgasstrom vom Substrat weggeführt. Die Metalloxide hingegen können aus der Gasphase heraus auf die Substratoberfläche adsorbieren. Dort kommt es durch Diffusions- und Keimbildungsprozesse zur Bildung des Dünnsfilms.

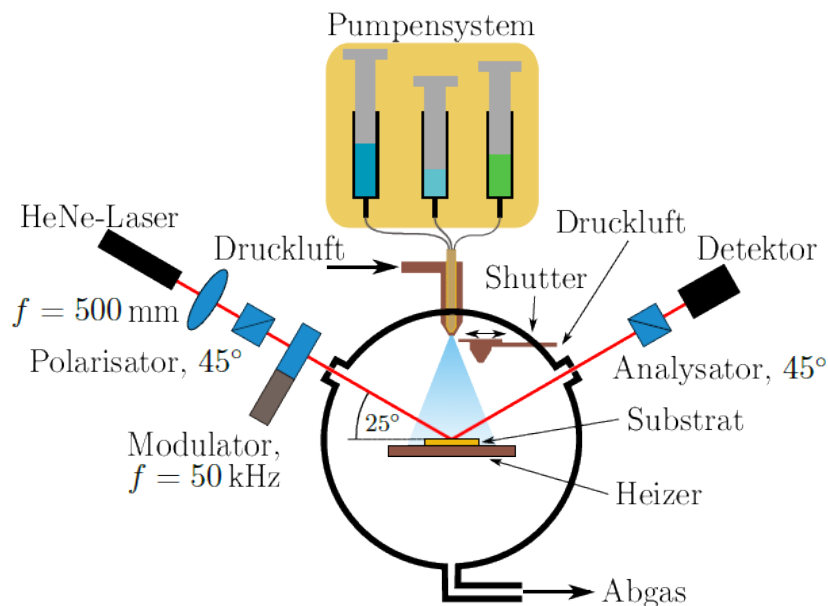


Abb. 3.1.: Schematische Darstellung der MAD-Anlage mit Wachstumskontrolle. Abbildung nach [99].

Die Wachstumsraten können dabei durch die Wahl der Pumpgeschwindigkeit, des Durchflusses der Druckluft, der Lösungskonzentration und der Depositionstemperatur im Bereich zwischen einigen wenigen bis mehreren hundert Nanometern pro Minute gesteuert werden [97].

Beim Ansetzen der Präkursorlösung ist zu beachten, dass die Pyrolyse für unterschiedliche Präkursoren verschieden ablaufen und daher das Verhältnis der Metallionen in der Lösung nicht dem Verhältnis im gewachsenen Film entsprechen muss [99]. Dies liegt daran, dass sich für jedes Metallion ein spezifischer Dampfdruck bei der Zersetzung des Präkursors einstellt. Durch diesen materialspezifischen Druck wird der relative Übertrag der Metallionen aus der Gasphase in den Dünnfilm beeinflusst. Um nun in der Probe das richtige Kationenverhältnis zu erhalten, werden empirische Korrekturfaktoren $\kappa_{A,B}$ zwischen den Metallionen der Sorte A und B verwendet, die man durch Optimierung der Probenqualität der Dünnfilme, beispielsweise auf Basis des Restwiderstandsverhältnisses im Fall metallischer Proben, ermittelt. Anschließend kann die gewünschte Stöchiometrie durch Multiplikation mit dem Korrekturfaktor erzielt werden.

Das verwendete Hochpräzisionspumpsystem zur Förderung der Lösung ist ein SyrDos2 Spritzendosierer der Firma HiTec Zhang GmbH [106], bei dem die Dosierung schrittmotorgesteuert erfolgt. Dabei entspricht das Volumen der installierten Spritzen der maximal möglichen Schrittzahl des Schrittmotors von 48000 Schritten. Für die in dieser Arbeit hergestellten Dünnfilme wurden ausschließlich 500 μl Spritzen verwendet, wodurch sich bei der Deposition eine Präzision der geförderten Lösungsmenge von 10 nl pro Schritt erreichen lässt. Dr. Sebastian Hühn schätzte in seiner Doktorarbeit [101] für das Wachstum von Perowskiten ab, dass eine Monolage (ML) des Dünnfilms etwa 5 μl bis 10 μl Lösung benötigt. Damit lässt sich die Dicke des Films auf etwa $\frac{1}{100}$ ML genau einstellen. Um diese Präzision für das Filmwachstum gewährleisten zu können, muss vor der eigentlichen Deposition die Zuleitung vom Dosiersystem bis zur Düsenöffnung präzise mit der entsprechenden Menge an Lösungsvolumen gefüllt werden, ohne dass dabei bereits ein Teil der Lösung auf das geheizte Substrat trifft und so ein unbeabsichtigtes und unkontrolliertes Wachstum erfolgt. Dies wird durch die Verwendung eines aktiven Shutter Systems realisiert, welches aus einem Auffangschirm und einer eigenen pneumatischen Düse besteht, womit auch das Wachstum einer einzelnen Monolage präzise möglich ist.

Der Shutter wird vor dem Befüllen der Zuleitungen vor die Düse geführt. Anschließend werden die Zuleitungen in der Düse mit etwas mehr als dem benötigten

Volumen gefüllt. Das überschüssige Volumen erzeugt zwar einen ersten Aerosolkegel, dieser trifft jedoch auf den Auffangschirm des Shutters auf und wird so daran gehindert auf das Substrat zu treffen. Durch die pneumatische Düse des Shutters wird sichergestellt, dass das Substrat in einem gleichmäßigen Luftstrom verbleibt. Mit dieser Ausstattung sind die Grundlagen für das präzise Wachstum von Heterostrukturen mit einer wohldefinierten Abfolge von Monolagen gegeben.

3.2. Ellipsometrie - *In-situ* Wachstumskontrolle

3.2.1. Motivation

Möchte man bei komplexen Oxiden den Einfluss von Grenzflächen auf die elektronischen und magnetischen Eigenschaften untersuchen, so stellt dies hohe Anforderungen an die verwendete Depositionsmethode. Beispielsweise müssen Heterostrukturen mit einer Präzision von einzelnen Atomlagen mit hoher Reproduzierbarkeit gewachsen werden können und an den Grenzflächen darf es nicht zur Durchmischung der verschiedenen Lagen kommen. Stattdessen müssen diese atomar scharf sein, damit auftretende Änderungen der Materialeigenschaften auf die Grenzflächen an sich zurückführbar sind und nicht durch eine effektive Dotierung in diesem Bereich erzeugt werden. Um dies zu gewährleisten, ist eine Überwachung des Filmwachstums während der Deposition zwingend nötig [99].

Die bekannteren Herstellungsverfahren im Bereich der Dünnschichtsynthese, zum Beispiel die gepulste Laser Deposition (PLD), arbeiten im Gegensatz zur MAD im Vakuum. Als Wachstumskontrolle kann somit die Beugung hochenergetischer Elektronen bei Reflexion (RHEED) genutzt werden [107]. In der MAD wird durch die atmosphärischen Bedingungen der maximale Druck für RHEED von 1 mbar [108] jedoch weit überschritten, weshalb eine alternative Kontrollmethode benötigt wird.

Unter anderem kann dies durch die Verwendung von Röntgenstrahlung für *in-situ* XRR-Messungen [43] oder durch einen Ellipsometrie-Aufbau realisiert werden. Wegen der langsamen Zählstatistik von üblichen Labor-Röntgenquellen wurde eine Wachstumskontrolle mittels Ellipsometrie aufgebaut, da das gewünschte zeitliche Auflösungsvermögen im Bereich von 0,1 s liegen sollte. Dadurch kann das Wachstum im Sub-Monolagenbereich, wie es bei der Atomlagenepitaxie benötigt wird, überwacht werden.

Neben der durchschnittlichen Schichtdicke sind im Ellipsometrie-Signal auch

Informationen über chemische Durchmischungen der einzelnen Lagen enthalten [99]. Dabei ist zu beachten, dass die Informationen über chemische Variationen meist nur durch die Anpassung von Modellfunktionen an die Messdaten bestimmt werden kann [109].

3.2.2. Theoretische Grundlagen der Ellipsometrie

In der Ellipsometrie betrachtet man die Änderung der Polarisation des Lichts nach Reflexion an der Oberfläche der Probe. Dafür wird zunächst der elektrische Feldvektor des einfallenden Lichts in eine Komponente parallel (p) und eine Komponente senkrecht (s) zur Einfallsebene zerlegt. Dies ist in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt. Ist das Licht linear polarisiert, so sind die parallele und die senkrechte Komponente des Lichts in Phase. Wählt man einen Polarisationszustand von 45° , so haben beide Komponenten die gleiche Amplitude.

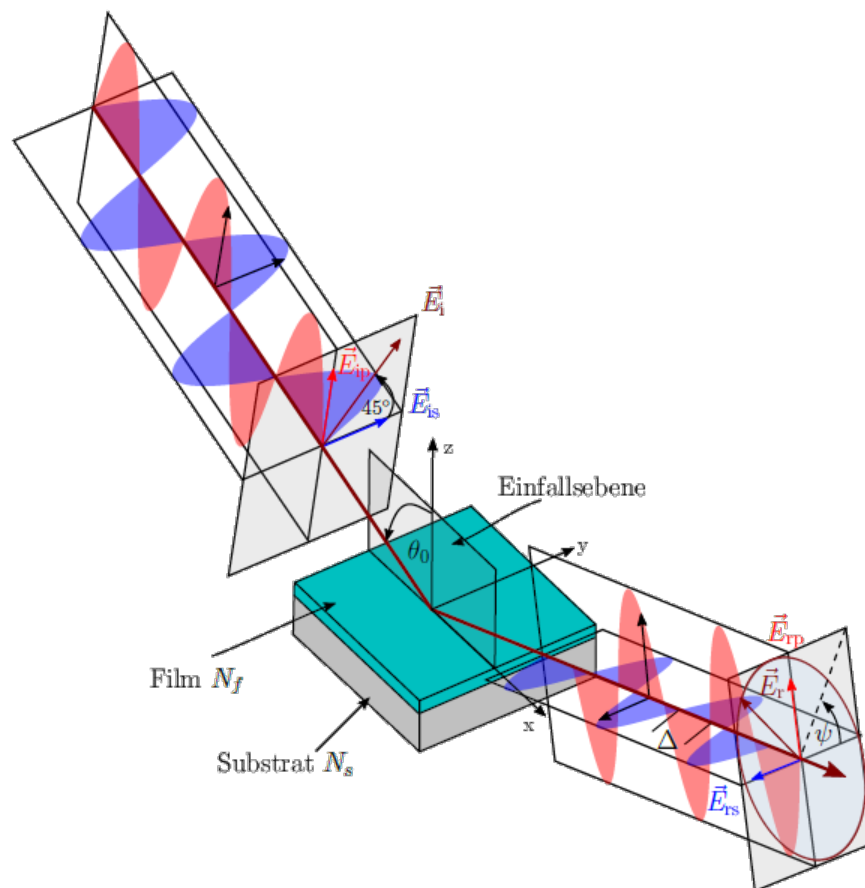


Abb. 3.2.: Schematische Darstellung der ellipsometrischen Winkel Ψ und Δ . Die Phasenverschiebung zwischen s- und p-Komponente wird durch Δ beschrieben und Ψ stellt ein Maß für ihr Verhältnis dar. Abbildung nach [110].

Bei der Reflexion an der Probe werden die Anteile der elektromagnetischen Welle wegen der komplexen Reflexionskoeffizienten $r_{p/s}$ unterschiedlich gebrochen. Dadurch ergibt sich beim reflektierten Licht eine elliptische Polarisation. Die Beschreibung der Ellipsometrie-Messung erfolgt über die sogenannten ellipsometrischen Winkel (Δ, Ψ) . Die theoretische Betrachtung dieser erfolgt über die in der Literatur [109] verwendete Definition der komplexen Reflexionskoeffizienten

$$r_p = \frac{E_{rp}}{E_{ip}} \quad , \quad r_s = \frac{E_{rs}}{E_{is}}$$

und die sogenannte Fundamentalgleichung der Ellipsometrie:

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan(\Psi) e^{i\Delta} \quad (3.1)$$

Δ beschreibt nach dieser Definition die Phasenverschiebung zwischen dem parallelen und dem senkrechten Anteil des reflektierten Lichts. Die Drehung der Hauptachse des elliptisch polarisierten Lichts aus der Einfallsebene heraus wird durch den Winkel Ψ beschrieben.

Fresnel-Gleichungen

Beim Übertritt des Lichtstrahls von einem Medium mit dem komplexen Brechungsindex N_i in ein zweites Medium mit Brechungsindex N_t , wobei der komplexe Brechungsindex durch $N = n - ik$ definiert ist, erfährt ein Teil des Strahls an der Grenzfläche eine Reflexion und ein Teil des Strahls transmittiert in das zweite Medium. Die Feldamplituden des reflektierten und transmittierten Strahls können mit der Amplitude der einfallenden Welle in Beziehung gesetzt werden, da für \vec{E} und \vec{B} die Anteile parallel zur Grenzfläche stetig sind [109].

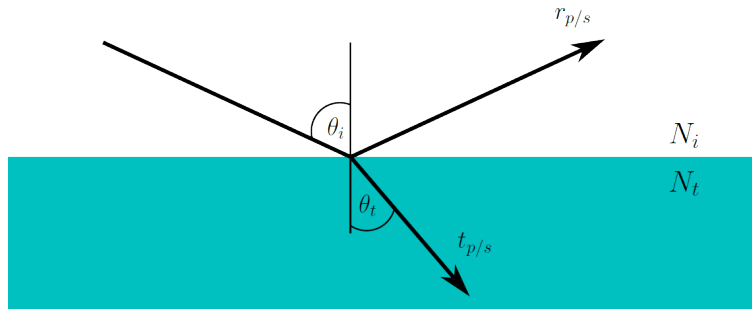


Abb. 3.3.: Schematische Darstellung der Reflexion an einer einzelnen Grenzfläche.

Für die parallelen (p) und senkrechten (s) Anteile ergeben sich damit die folgenden Fresnelkoeffizienten [109]:

$$r_p = \frac{N_t \cos \theta_i - N_i \cos \theta_t}{N_t \cos \theta_i + N_i \cos \theta_t}, \quad r_s = \frac{N_i \cos \theta_i - N_t \cos \theta_t}{N_i \cos \theta_i + N_t \cos \theta_t} \quad (3.2)$$

$$t_p = \frac{2N_i \cos \theta_i}{N_t \cos \theta_i + N_i \cos \theta_t}, \quad t_s = \frac{2N_i \cos \theta_i}{N_i \cos \theta_i + N_t \cos \theta_t} \quad (3.3)$$

wobei $r_{p/s}$ für den reflektierten und $t_{p/s}$ für den transmittierten Strahl maßgebend sind. Durch das Snelliussche Brechungsgesetz

$$N_i \sin \theta_i = N_t \sin \theta_t$$

lässt sich der Winkel θ_t des transmittierten Strahls bestimmen.

Reflexion an Schichtsystemen

Betrachtet man die Reflexion am Schichtsystem, so müssen zusätzlich die Brechungen des Strahls an den einzelnen Grenzflächen der Probe berücksichtigt werden.

In Abbildung 3.4 ist schematisch die Brechung an einer Probe der Schichtdicke d und Brechungsindex N_1 auf einem Substrat mit Brechungsindex N_2 gezeigt. An der Grenzfläche zwischen Luft (Brechungsindex N_0) und der Probe wird zunächst der einfallende Strahl wie zuvor beschrieben in einen reflektierten und einen transmittierten Teilstrahl aufgeteilt. Anschließend durchläuft der transmittierte Strahl die Schicht und trifft auf die Grenzfläche zwischen Film und Substrat. Dort erfolgt ebenfalls eine Brechung des Strahls. Die Fresnelkoeffizienten der einzelnen Brechungen können wie in Gleichung (3.2) und (3.3) bestimmt und die auftretenden Winkel θ_1 und θ_2 über das Snelliussche Brechungsgesetz ermittelt werden.

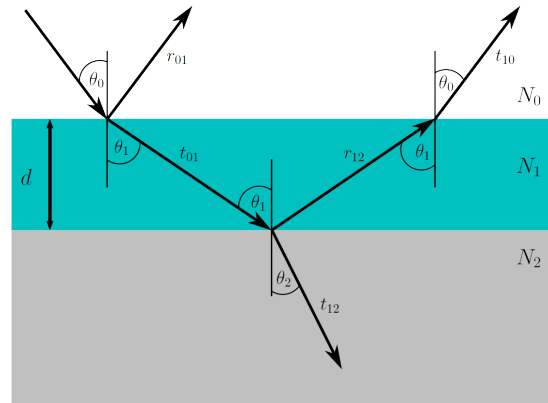


Abb. 3.4.: Schematische Darstellung der Reflexion an einer einzelnen Schicht. Der einfallende Strahl wird an der oberen und unteren Grenzfläche gebrochen.

Beim einmaligen Durchlaufen der Probe ändert sich die Phase der Welle um $\exp(-i\beta)$. Der Faktor β wird als Phasendicke des Films bezeichnet und berechnet sich nach [109] durch

$$\beta = \frac{2\pi d}{\lambda} N_1 \cos \theta_1$$

wobei λ die Wellenlänge des verwendeten Lichts ist. Werden die einzelnen mehrfach reflektierten Teilstrahlen unter Berücksichtigung der Phasenänderungen addiert, ergeben sich als Fresnelkoeffizienten [109] für die Totalreflexion

$$r_{p/s} = \frac{r_{01,p/s} + r_{12,p/s} \exp(-2 \cdot i\beta)}{1 + r_{01,p/s} r_{12,p/s} \exp(-2 \cdot i\beta)}$$

und für die Totaltransmission

$$t_{p/s} = \frac{t_{01,p/s} t_{12,p/s} \exp(-2 \cdot i\beta)}{1 + r_{01,p/s} r_{12,p/s} \exp(-2 \cdot i\beta)}$$

In Heterostrukturen, die aus n verschiedenen Lagen bestehen, lassen sich die Koeffizienten für das gesamte System leichter mittels der Transfermatrix-Methode (siehe dazu Anhang A) bestimmen, wie sie in [111] beschrieben ist. Bei dieser Methode wird jeder Lage eine 2×2 Matrix

$$M_j = R_{0,j} L_j R_{j,0}$$

zugeordnet. Dabei bezeichnet die Matrix $R_{0,j}$ die Reflexion von Licht an der Grenzfläche zwischen Luft und Lage j , wobei der Strahl aus dem Medium Luft kommt, und die Matrix $R_{j,0}$ beschreibt den Fall wenn der einfallende Strahl aus der Lage j auf die Grenzfläche trifft. Mit L_j erfolgt die Beschreibung der Phasenänderung aufgrund der Bewegung des Lichts in der Schicht mit der Dicke d_j . Für das Substrat ergibt sich die zugehörige Matrix zu

$$M_0 = R_{0, \text{sub}}$$

Aus den Einträgen der resultierenden 2×2 Matrix

$$M_{p,s} = \left(\prod_{j=0}^n M_j \right)_{p,s} = \begin{pmatrix} m_{00} & m_{01} \\ m_{10} & m_{11} \end{pmatrix}_{p,s}$$

ergeben sich die Fresnelkoeffizienten des gesamten Schichtsystems zu

$$r_{p,s} = \left(\frac{m_{10}}{m_{00}} \right)_{p,s}$$

$$t_{p,s} = \left(\frac{1}{m_{00}} \right)_{p,s}$$

Der Vorteil bei dieser Methode liegt vor allem in der relativ einfachen Bestimmung des Einflusses einer bestimmten Lage j auf die ellipsometrischen Winkel, da hierfür lediglich die Matrix M_j an die neuen Parameter, zum Beispiel eine andere Schichtdicke oder ein anderer Brechungsindex, angepasst werden muss. Die restlichen Matrizen bleiben unverändert.

In der selbst geschriebenen Software **Ellipsometry Simulator** wird die Transfermatrix-Methode genutzt, um den zeitlichen Verlauf der ellipsometrischen Winkel für Einzel- und Multilagen zu simulieren. Dadurch kann der Einfluss der Schichtdicke bei festen optischen Konstanten auf die ellipsometrischen Winkel dargestellt werden. Außerdem soll mit diesem Programm gezeigt werden, wie man auch ohne exakte Kenntnis des Brechungsindex beim Vergleich zweier Schichten des selben Materials, z.B. SrRuO₃, eine relative Aussage über die Schichtdicken treffen und die optischen Konstanten vergleichen kann. Dies erfolgt über die sogenannte Δ - Ψ Trajektorie, wie sie zum Beispiel in Abbildung 3.5 für einen transparenten Dünnsfilm dargestellt ist.

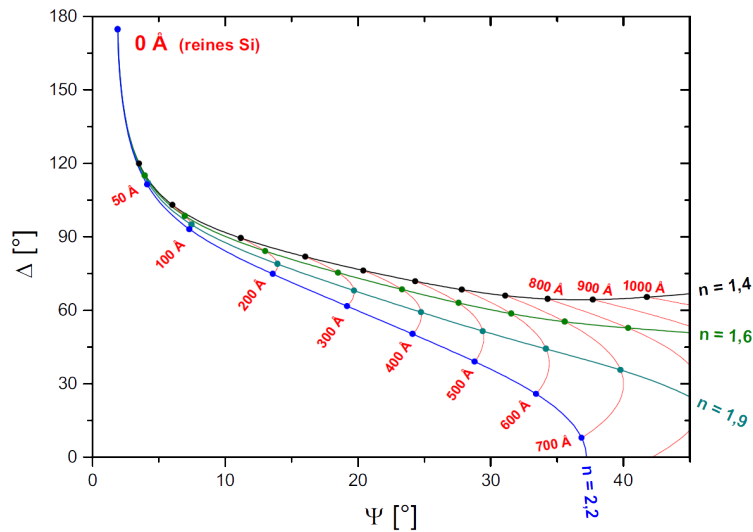


Abb. 3.5.: Verlauf der Δ - Ψ Trajektorie eines transparenten Dünnsfilms für verschiedene Brechungsindizes n bei einem konstanten Einfallswinkel $\theta_0 = 75^\circ$ und fester Wellenlänge $\lambda = 585,2 \text{ nm}$. Abbildung aus [112].

Im Fall ultradünner Filme zeigten Azzam *et al.* [113], dass die Änderung $\delta\rho/\rho_0$ des Ellipsometriesignals proportional zur Änderung δd der Schichtdicke ist:

$$\frac{\delta\rho}{\rho_0} = K \cdot \delta d$$

$$K = \frac{2\pi N_1 \cos \theta_1}{\lambda} \left(\frac{r_{12,p}}{r_{01,p} + r_{12,p}} - \frac{r_{01,p} r_{12,p}}{1 + r_{01,p} r_{12,p}} - \frac{r_{12,s}}{r_{01,s} + r_{12,s}} + \frac{r_{01,s} r_{12,s}}{1 + r_{01,s} r_{12,s}} \right)$$

Die Konstante K ist über die Fresnelkoeffizienten mit den optischen Konstanten des wachsenden Materialsystem verknüpft. Der Real- und der Imaginärteil von $\delta\rho/\rho_0$ lässt sich mit der Änderung der ellipsometrischen Winkel (Δ, Ψ) bestimmen:

$$\Delta - \Delta_0 = \text{Im} \left(\frac{\delta\rho}{\rho_0} \right) = \text{Im} (K) \cdot \delta d \quad (3.4)$$

$$\Psi - \Psi_0 = \text{Re} \left(\frac{\delta\rho}{\rho_0} \right) = \left(\frac{1}{2} \tan (2\Psi_0) \cdot \text{Re} (K) \right) \cdot \delta d \quad (3.5)$$

Aus dem zeitlichen Verlauf von $\text{Im} \left(\frac{\delta\rho}{\rho_0} \right)$ kann eine Aussage zur Schichtdicke eines Materialsystems über die zeitlichen Dauer $t_{\text{Ende}} - t_{\text{Start}}$ des Filmwachstums getroffen werden. Außerdem kann durch die unterschiedliche Krümmung zwischen verschiedenen Systemen unterschieden werden.

Zudem zeigten Mandal *et al.* [114] am Beispiel von TbMnO_3 Dünnschichten auf (111) orientiertem yttriumstabilisiertem Zirkoniumdioxid, dass mittels optischer Ellipsometrie durch die Änderung der optischen Konstanten und der elektronischen Struktur ein struktureller Phasenübergang abgebildet werden kann.

3.3. Experimenteller Aufbau

In diesem Abschnitt soll eine Beschreibung der während dieser Arbeit realisierten MAD-Anlage inklusive der verwendeten Ellipsometrie-Konfiguration für die *in-situ* Wachstumskontrolle, wie sie in Abbildung 3.6 zu sehen ist, erfolgen. Zuerst wird dafür die Depositionskammer und die Funktionsweise der pneumatischen Düse beschrieben. Anschließend erfolgt eine Beschreibung der Datenaufnahme der Ellipsometrie und abschließend werden zwei Möglichkeiten zur Temperaturkontrolle genannt und miteinander verglichen.

Die Ansteuerung sämtlicher Prozesse, also das Heizen, die präzise Dosierung mit den Spritzendosierern, die Datenaufnahme der Ellipsometrie und die Temperaturmessung durch das verbaute Pyrometer, erfolgt mit dem selbst geschriebenen Programm **PyraMAD**.

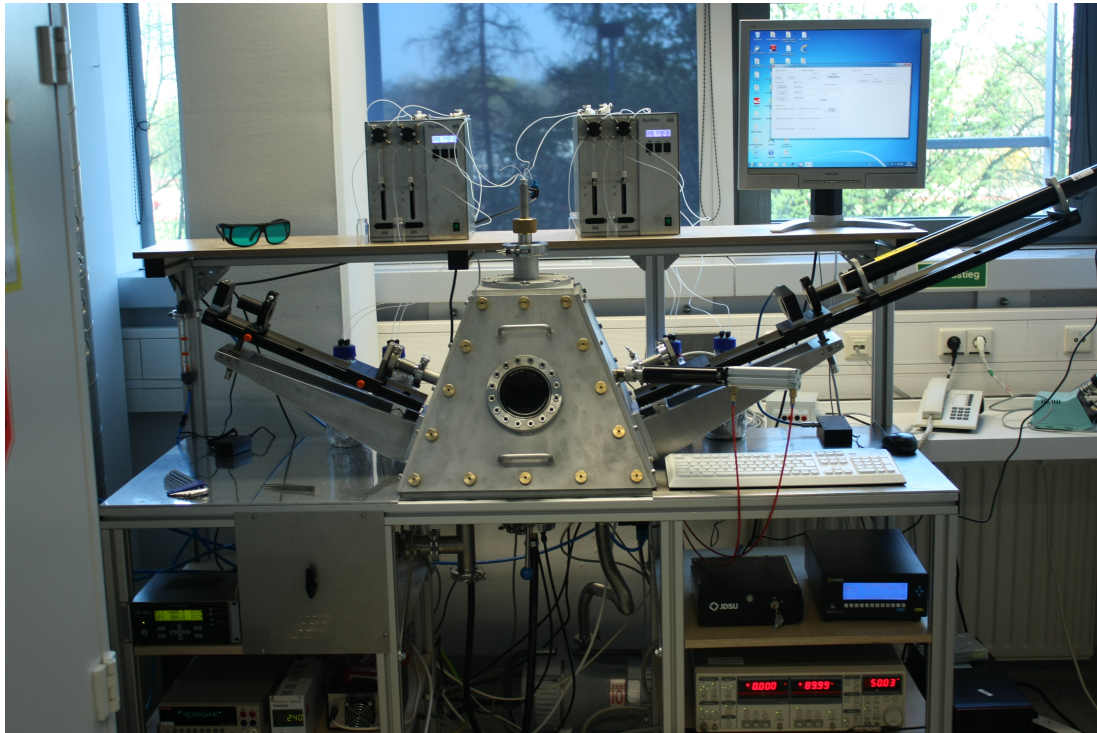


Abb. 3.6.: Darstellung der kompletten MAD - Anlage mit Wachstumskontrolle und aktiven Shutterssystem.

3.3.1. Die Depositionskammer

Folgende zwei Bedingungen wurden an die äußere Form der Depositionskammer gestellt:

- (1) Die Düse soll oberhalb des Heizers positioniert werden, damit das Aerosol senkrecht nach unten auf das Substrat gesprüht werden kann.
- (2) Die Befestigung des Ellipsometrieaufbaus soll der Einfachheit halber senkrecht auf den Seitenelementen montiert werden, damit der Laserstrahl möglichst senkrecht auf die Linse trifft und nicht wegen eines schiefen Auftreffens auf der Linse der senkrechte und parallele Anteil des Lichts unterschiedlich gebrochen werden.

Wie Dr. Markus Jungbauer in seiner Doktorarbeit [99] gezeigt hat, verschwindet unter dem Brewster-Winkel θ_B für die parallele Komponente der Reflektivität, d.h. $r_p = 0$. Trifft der Strahl unter einem Winkel $\theta_0 \approx \theta_B$ auf das Substrat auf, so stellt sich beim Wachstum weiterer Schichten eine starke Änderung der Phase Δ ein. Außerdem erhöht sich in dem in Abschnitt 3.3.3 vorgestellten Ellipsometrieaufbau die Sensitivität da außerdem $\Psi = 0^\circ$ gilt [99].

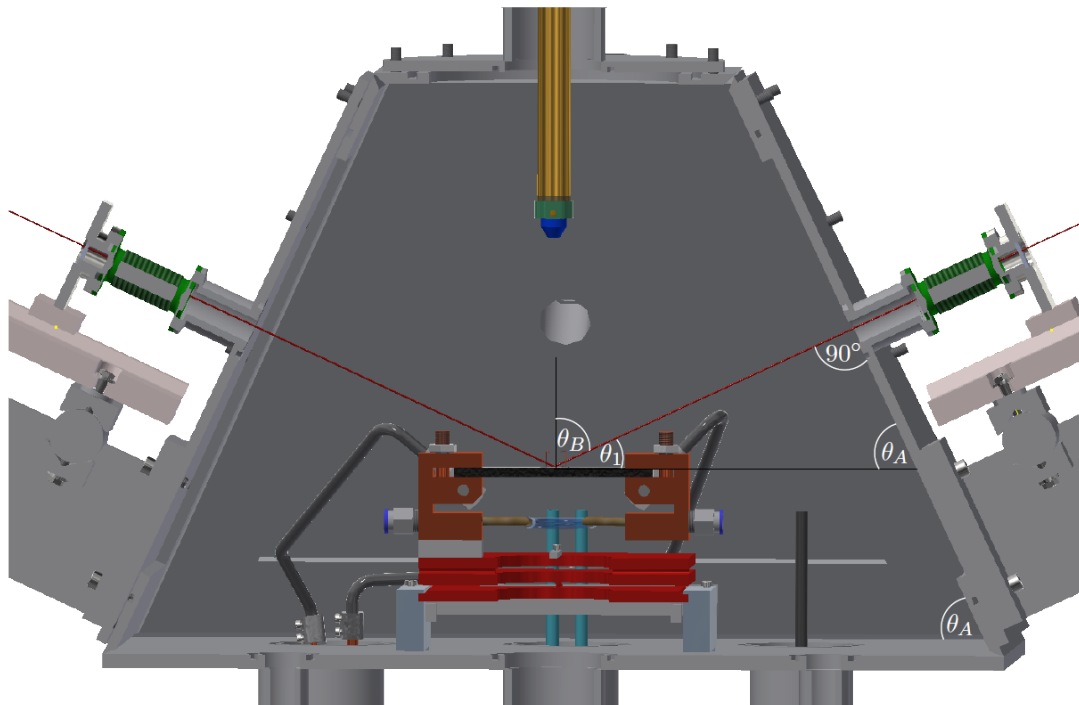


Abb. 3.7.: Darstellung des gewählten Anstellwinkels der Seitenwände der MAD - Anlage.

Für das verwendete Substratmaterial SrTiO_3 ist der Brewster-Winkel $\theta_B \approx 67,3^\circ$ [99] bei der Wellenlänge $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ des verwendeten Lasers. Wie in Abbildung 3.7 zu sehen ist, ergibt sich der Winkel θ_1 zwischen Strahl und Heizer zu $\theta_1 = 90^\circ - \theta_B$. Aus der Winkelsumme in Dreiecken wird auf diese Weise der Anstellwinkel $\theta_A = 180^\circ - 90^\circ - \theta_1$ festgelegt.

Durch die Wahl des Winkels zwischen Seitenwand und Kammerboden im Bereich des Brewster-Winkels können sowohl die anfangs genannten Bedingungen an die äußere Form der Kammer erfüllt, als auch eine möglichst große Sensitivität in der Ellipsometriemessung realisiert werden. Bei der aufgebauten Anlage wurde ein Anstellwinkel von $\theta_A = 65^\circ$ gewählt.

Eine weitere Anforderung an die Kammer ist, dass sie bis zum Bereich des Feinvakuums ($\sim 10^{-1} \text{ mbar}$) abgepumpt werden kann. Anschließend soll durch die Verwendung von Massenfluss-Reglern eine kontrollierte Gasmischung aus Stickstoff und Sauerstoff eingestellt und diese in das Innere der Depositionskammer geleitet werden, um den in der Kammer enthaltenen Sauerstoffanteil kontrollieren zu können. Die selbe Gasmischung wird bei der Deposition anstelle der Druckluft als Trägergas verwendet. Über diesen Prozess lässt sich indirekt der Sauerstoffpartialdruck kontrollieren und ermöglicht das Wachstum von Oxiden mit reduzierten Oxidationsstufen, wie zum Beispiel in den verschiedenen Phasen der Vanadiumoxide V_xO_y . Außerdem zeigten Fujita *et al.* das ein erfolgreiches Wachstum des Pyrochlor-Iridats $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ nur in einem kleinen Bereich mit reduziertem Sauerstoffpartialdruck gelang [115], weshalb es wichtig ist den vorhandenen Sauerstoff während der Deposition kontrollieren zu können.

Dafür wurde an die MAD eine XDS10 Scroll-Pumpe der Firma Edwards [116] angeschlossen, mit der die Depositionskammer evakuiert wird. Eine Compact Full-Range Messröhre der Firma Pfeiffer [117], die an einen TPG300 Controller [118] angeschlossen ist, überwacht den Kammerdruck.

Für die Sauerstoffkontrolle wurden 2 Massenfluss-Regler vom Typ GE50A [119] der Firma MKS Instruments verwendet, deren Durchfluss über einen PR400B-F Controller [120] geregelt werden kann. Mit dem Programm **PyraMAD** kann der Sauerstofffluss im Bereich zwischen 5 sccm und 5000 sccm und der Gesamtfluss der Gasmischung zwischen $1,0 \frac{\text{Nm}^3}{\text{hr}}$ und $1,5 \frac{\text{Nm}^3}{\text{hr}}$ geregelt werden. Dabei entspricht $1,0 \frac{\text{Nm}^3}{\text{hr}}$ (Normkubikmeter pro Stunde) 16666,66 sccm (Standardkubikzentimeter pro Minute). Damit lässt sich der prozentuale Anteil des Sauerstofffluss wie in Abbildung 3.8 dargestellt einstellen.

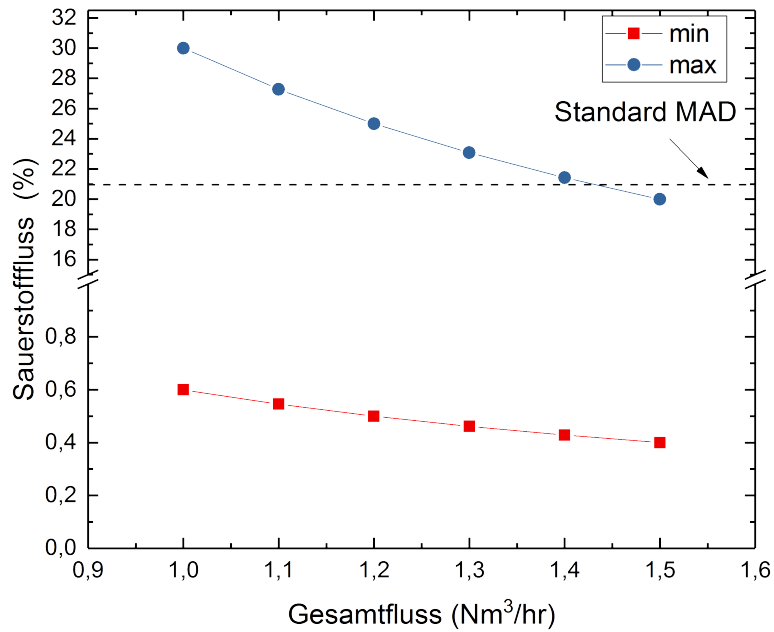


Abb. 3.8.: Einstellbarer Bereich des Sauerstoffanteils bei der Verwendung der Massenfluss-Regler zur Sauerstoffkontrolle. Der prozentuale Sauerstoffanteil kann bei konstanten Kammerdruck als Maß für den Sauerstoffpartialdruck verwendet werden.

Wie Dr. Markus Jungbauer in seiner Doktorarbeit [99] beschrieben hat, können Fenster zum Abschließen der Kammer im Bereich des Ellipsometrie-Aufbaus nicht verwendet werden, da durch das Aufheizen der Anlage und damit der Fenster eine zusätzliche Phasenverschiebung zwischen s- und p-polarisierter Welle das Ellipsometriesignal überlagern würde. Um die Kammer trotzdem abzudichten, wurden stattdessen die für die Ellipsometrie benötigten Linsen nach einer Idee von Carsten Mahn dicht in ihrer Halterung eingeklebt, um diese als Fenster zu verwenden.

3.3.2. Pneumatische Düse und aktiver Shutter

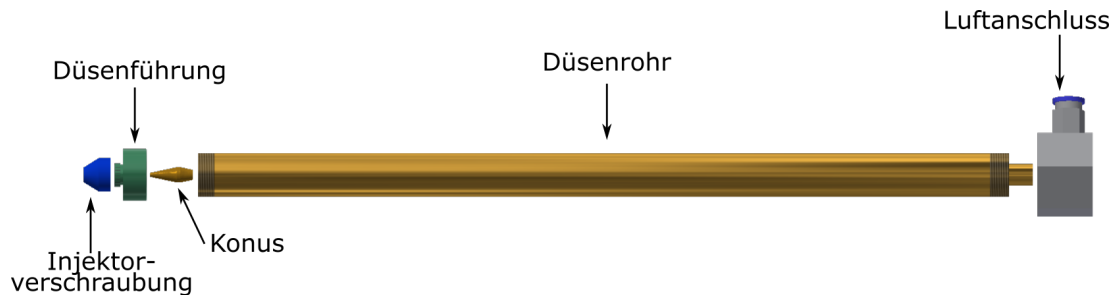


Abb. 3.9.: Aufbau der pneumatischen Düse.

Die verwendete pneumatische Düse wurde in Zusammenarbeit mit dem 1. Physikalischen Institut der Georg-August-Universität Göttingen hergestellt und ist eine Weiterentwicklung der in [121] genannten Bauform. Wie in Abbildung 3.9 dargestellt ist, besteht die Düse aus fünf Teilen:

- Mit dem **Luftanschluss** wird die Druckluft in das Düsenrohr geführt.
- Im **Düsenrohr** wird die angesetzte Präkursorlösung mittels Teflonschläuchen durch einen Kanal in der Mitte des Rohres gefördert. Konzentrisch um den mittleren Kanal sind sechs weitere Kanäle gebohrt, durch welche die Druckluft getrennt von der Lösung relativ laminar transportiert werden kann.
- Die Aufgabe der **Düsenführung** liegt zum einen darin, den Konus fest an seine Position zu arretieren. Zum anderen wird mit ihr die Strömung der Luft weiter beruhigt, wodurch es zu einem einheitlicheren Aerosolkegel kommt.
- Der **Konus** dient vor allem dazu die Teflonschläuche der verschiedenen Leitungen einzuklemmen und zentral in der Düsenöffnung zu positionieren. Der Konus ist so groß, dass die Spitze des Konus bis in die Injektorverschraubung reicht.
- In der **Injektorverschraubung** erfolgt die eigentliche Aerosolerzeugung. In ihr trifft die laminare Luftströmung auf die Präkursorlösung und es erfolgt die Mischung der beiden. Durch die Öffnung des Injektors, der wie

eine Laval-Düse geformt ist, wird die Mischung anschließend aus der Düse beschleunigt und es erfolgt eine Zerstäubung und die Aerosolbildung ist abgeschlossen.

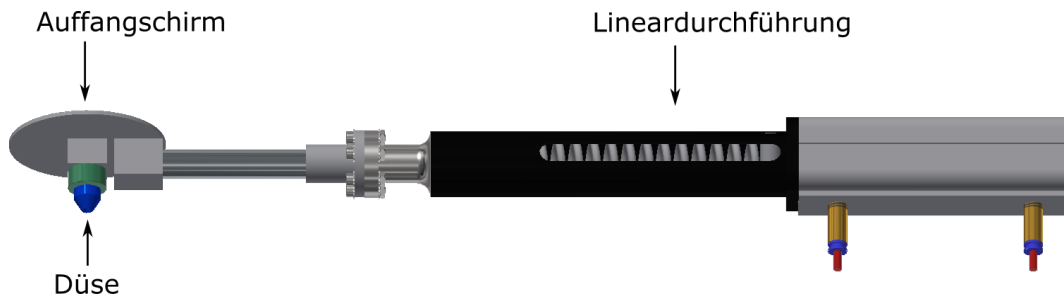


Abb. 3.10.: Aufbau des aktiven Shutter systems.

Für das in Abbildung 3.10 dargestellte aktive Shutter system wird ein zweiter baugleicher Düsenkopf verwendet, der unterhalb eines kreisförmigen Auffangschirms montiert ist. Das System ist an einer Lineardurchführung montiert, die pneumatisch den Shutter innerhalb weniger Sekunden vor die Düse positionieren kann. Der Luftfluss aus dem Shutter wird benötigt, um die Kühlung des Substrats durch den Luftstrom und damit die Temperatur stabil zu halten. Dennoch darf der Shutter den Aerosolkegel während der eigentlichen Deposition nicht negativ beeinflussen. Ein Magnetventil öffnet daher den Luftstrom durch den Shutter nur wenn der Shutter verwendet wird. Befindet sich der Shutter in seiner Ruheposition ist das Ventil geschlossen.

3.3.3. *In-situ* Wachstumskontrolle

Als *in-situ* Wachstumskontrolle wird, wie in Abschnitt 3.2.1 motiviert, ein Ellipsometrie-Aufbau genutzt. Das Messprinzip basiert bei dem gewählten Setup auf der Phasenmodulation mittels eines photoelastischen Modulators (PEM) und weist die Struktur der Polarisator-Modulator-Probe-Analysator (PMSA) Konfiguration auf, mit der sehr schnelle Messungen realisiert werden können [109].

Das linear polarisierte Laserlicht eines HeNe-Laser ($\lambda = 632,8\text{ nm}$) der Firma Lumentum Operations LLC [122] wird durch einen Glan-Thompson Polarisator [123] gestrahlt und damit eine lineare 45° Polarisation in Bezug auf die Einfallsebene erzeugt. Danach durchläuft der linear polarisierte Strahl den photoelastischen Modulator [124]. Dies führt dazu, dass zwischen der p- und der s-Welle des Lichts eine Phasenverschiebung $\delta(t) = \delta_0 \sin(\omega t)$ mit der Frequenz $f = 50\text{ kHz}$ erzeugt wird. Anschließend wird mittels einer Linse der Laserstrahl auf die Probe fokussiert. Nach der Reflexion an der Probenoberfläche fokussiert eine weitere Linse den Strahl auf einen Photodetektor. Vor dem Detektor [125] befindet sich ein zweiter Glan-Thompson Polarisator [123], dessen Durchlassrichtung einen Winkel von 45° mit der Einfallsebene aufweist. Der Si-Detektor misst die Intensität des ankommenden Lichts.

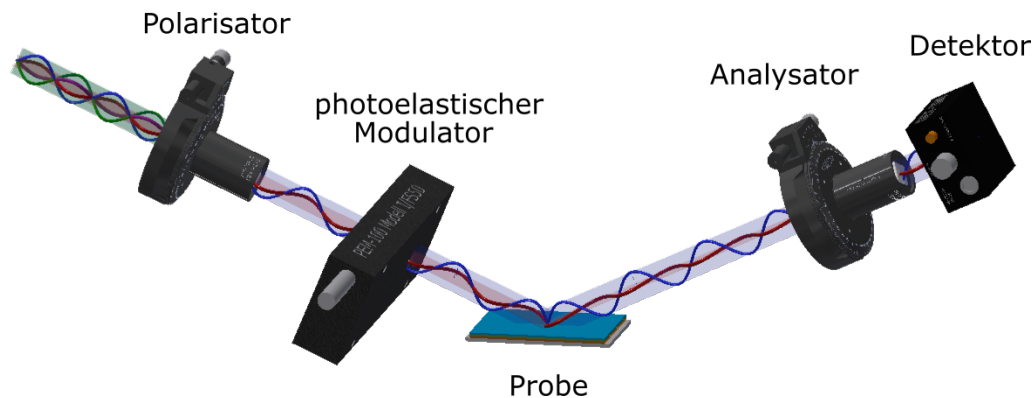


Abb. 3.11.: Schematische Darstellung des Ellipsometrie in der PMSA Konfiguration. Unpolarisiertes Licht wird durch den Polarisator linear polarisiert. Durch den photoelastischen Modulator wird zwischen der p- (blau) und der s-Welle (rot) eine mit 50 kHz oszillierende Phasenverschiebung eingeführt. An der Probenoberfläche werden p- und s-Welle aufgrund des Brechungsindex unterschiedlich reflektiert, wodurch das Licht elliptisch polarisiert wird. Mit einem Analysator und einem Detektor werden sowohl die Phasenverschiebung (Δ) zwischen p- und s-Welle als auch die Amplitudenänderung ($\tan \Psi$) gemessen.

Die am Detektor messbare Intensität lässt sich bei diesen Einstellungen in der Form

$$\begin{aligned}
I(t) = I_0 & (1 + J_0(\delta_0) \sin(2\Psi) \cos(\Delta) \\
& + 2J_1(\delta_0) \sin(2\Psi) \sin(\Delta) \sin(\omega t) \\
& + 2J_2(\delta_0) \sin(2\Psi) \cos(\Delta) \cos(2\omega t))
\end{aligned} \tag{3.6}$$

beschreiben [99,109]. Die Faktoren $J_i(\delta_0)$ stellen dabei die Bessel-Funktionen i -ter Ordnung dar. Wählt man am PEM die Modulationsamplitude $\delta_0 = 138^\circ$, ergeben sich für die Bessel-Funktionen die Werte $J_0 \approx 0$, $J_1 \approx 0,52$ und $J_2 \approx 0,43$ [109]. Dadurch vereinfachen sich die zeitlichen Intensitätsverläufe zu

$$I_{\text{DC}} = I_0 \tag{3.7}$$

$$I_\omega = 2J_1(\delta_0) I_{\text{DC}} \sin(2\Psi) \sin(\Delta) \tag{3.8}$$

$$I_{2\omega} = 2J_2(\delta_0) I_{\text{DC}} \sin(2\Psi) \cos(\Delta) \tag{3.9}$$

mit denen die experimentellen Werte (Δ, Ψ) durch

$$\tan(\Delta) = \frac{I_\omega}{I_{2\omega}} \tag{3.10}$$

$$\sin(2\Psi) = \frac{I_{2\omega}}{2J_1(\delta_0) I_{\text{DC}} \cos(\Delta)} \tag{3.11}$$

berechnet werden können.

Die gemessene Spannung am Si-Detektor ist proportional zur Intensität. Der DC-Anteil wird mit einem Keithley 2000 Multimeter [126] aufgenommen. Für die Messung von I_ω und $I_{2\omega}$ wird jeweils ein SR830 Lock-In Verstärker der Firma Stanford Research Systems [127] verwendet. Diese sind an den Controller des photoelastischen Modulators angeschlossen und bekommen von diesem das entsprechende Referenzsignal für die Datenaufnahme.

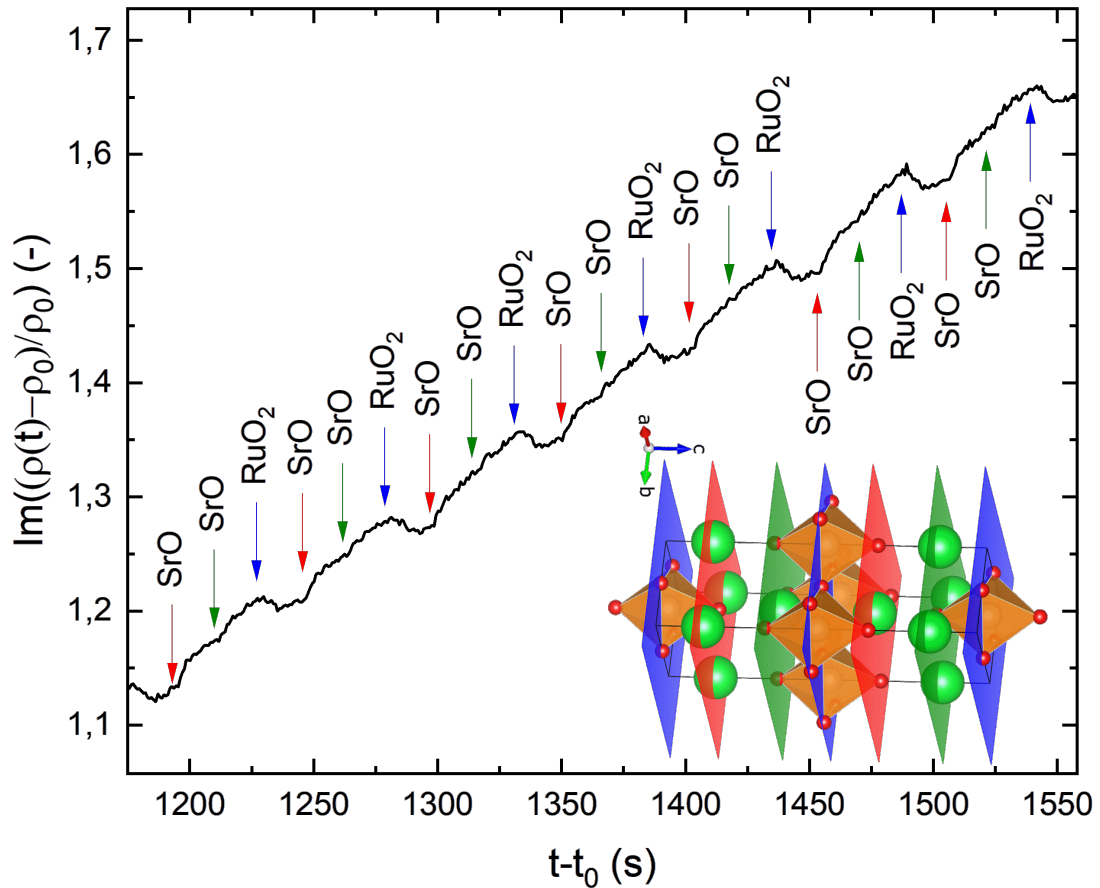


Abb. 3.12.: Ellipsometriesignal einer lagenweise gewachsenen Sr₂RuO₄ Dünnschicht. Der Start des Wachstums der einzelnen SrO (rot und grün) sowie der RuO₂ (blau) Lagen ist mit den Pfeilen markiert. Im Inset ist die Einheitszelle von Sr₂RuO₄ dargestellt. Die einzelnen Lagen sind farbig markiert.

Das mit diesem Ellipsometrieaufbau aufgenommene Signal eines in Atomlagenepitaxie¹ gewachsenen Sr₂RuO₄ Dünnschicht ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Im Inset ist die zugehörige Kristallstruktur zu sehen. Die einzelnen SrO Lagen sind in rot und grün und die RuO₂ Ebenen in blau markiert. Beim Wachstum des Dünnschichtes wurden die einzelnen SrO und RuO₂ Lagen separat voneinander gewachsen. In der Ellipsometrie kann deutlich zwischen den verschiedenen Lagen unterschieden werden. Die farbigen Pfeile markieren dabei den Start des Wachstums der jeweiligen Lage. Am Beispiel der Ellipsometrie von Sr₂RuO₄ zeigt sich, dass mit dem installierten Ellipsometrieaufbau das Wachstum auf einer atomaren Längenskala überwacht werden kann.

¹engl.: atomic layer epitaxy

3.3.4. Temperaturkontrolle

Das Heizen der MAD-Anlage erfolgt resistiv durch das Anlegen eines Stroms an den Siliziumkarbid Heizer. Die Heizleistung hängt dabei vom Widerstand des Heizers ab. Um nun eine Relation zwischen angelegtem Heizerstrom I_{Heiz} und der Temperatur T im Inneren der Kammer zu erhalten, wird ein IMPAC-Pyrometer IGA 140/23 der Firma LumaSense Technologies [128] fest an der MAD installiert. Dieses Pyrometer kann Temperaturen im Bereich von 100°C bis 1300°C messen. Der Emissionsgrad ϵ wird für die korrekte Berechnung der Temperatur auf den Wert von Siliziumkarbid eingestellt. Während des gesamten Depositionsprozesses wird die Temperatur mit dem Pyrometer aufgezeichnet.

In einer zweiten Methode wird der zuvor beschriebene Ellipsometrie-Aufbau verwendet. Dazu wird auf dem Heizer ein beidseitig poliertes Al_2O_3 - Substrat befestigt und während des Aufheiz- und Abkühlprozess die Intensität des reflektierten Laserstrahls gemessen.

Wie in Abbildung 3.13 dargestellt ist, erfolgt an der Oberfläche des Substrats Reflexion und Transmission für den einfallenden Strahl. Der transmittierte Anteil läuft durch das Substrat zur Unterseite des Substrats, wo er teilweise reflektiert wird. Der Gangunterschied Δs zwischen dem an der Oberfläche und dem an der Unterseite reflektiertem Strahl hängt dabei von dem Einfallswinkel θ_0 und der Dicke d_{tot} des Substrats ab. Beträgt der Gangunterschied ein Vielfaches der Wellenlänge des verwendeten Lasers, so interferieren die Teilstrahlen konstruktiv miteinander. Dadurch ergeben sich in der aufgenommenen Intensität deutliche Oszillationen, wie sie in Abbildung 3.14 zu sehen sind. Bei Kenntnis des thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_{therm} von Al_2O_3 kann die Schichtdicke und damit die auftretenden Oszillationen in Relation zur mittleren Temperatur des Substrats gebracht werden. Da bei zwei unabhängigen Messungen mit demselben Substrat bei gleicher Anzahl an Oszillationen die gleiche Temperatur

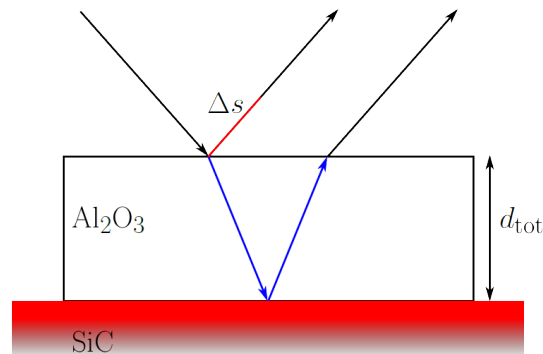


Abb. 3.13.: Schematische Darstellung der Reflexion an einem beidseitig polierten Substrat für die Temperaturbestimmung.

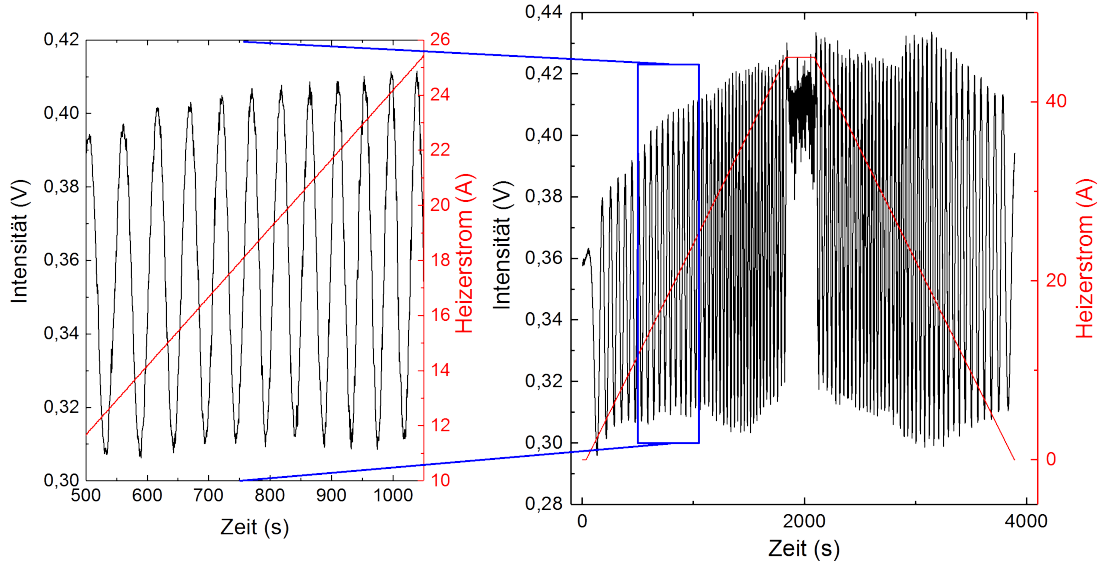


Abb. 3.14.: Oszillationen im zeitlichen Verlauf der reflektierten Intensität. *Rechts:* Darstellung des oszillatorischen Verhaltens während des gesamten Heizprozesses.

Links: Vergrößerte Abbildung des rechts markierten Ausschnittes zur Veranschaulichung des klar oszillatorischen Verhaltens der Intensität. Der Abstand zwischen den einzelnen Maxima ist für höhere Temperaturen nahezu äquidistant.

gegeben sein muss, bietet diese Messtechnik eine gute Möglichkeit, geringe Veränderungen innerhalb der MAD, wie beispielsweise der thermischen Ankopplung des Substrats auf dem Heizer durch Änderung der Heizeroberfläche, präzise zu messen und falls notwendig eine Neukalibrierung der Temperatur vorzunehmen.

Vergleicht man die mit dem Pyrometer gemessene Temperatur mit der aus den Intensitätsoszillationen ermittelten, lässt sich in einem großen Bereich eine hohe Übereinstimmung der beiden Messtechniken beobachten. Bei kleinen Heizströmen ($I_{\text{Heiz}} \lesssim 6 \text{ A}$) ist die Temperatur niedriger als die untere Schwelle des Pyrometers und kann daher von diesem nicht korrekt dargestellt werden. Überschreitet der Heizstrom einen Wert $I_{\text{Heiz}} \gtrsim 35 \text{ A}$ weichen die beiden Temperaturverläufe voneinander ab. Dies kann zum einen an der linearen Näherung bei der Temperaturberechnung mittels der Intensitätsoszillationen liegen. Zum anderen kann sich temperaturbedingt der reale Emissionsgrad des SiC Heizers verändern und so von dem am Pyrometer eingestellten Wert abweichen. Dies führt dann ebenfalls zu einer falschen Bestimmung der Temperatur.

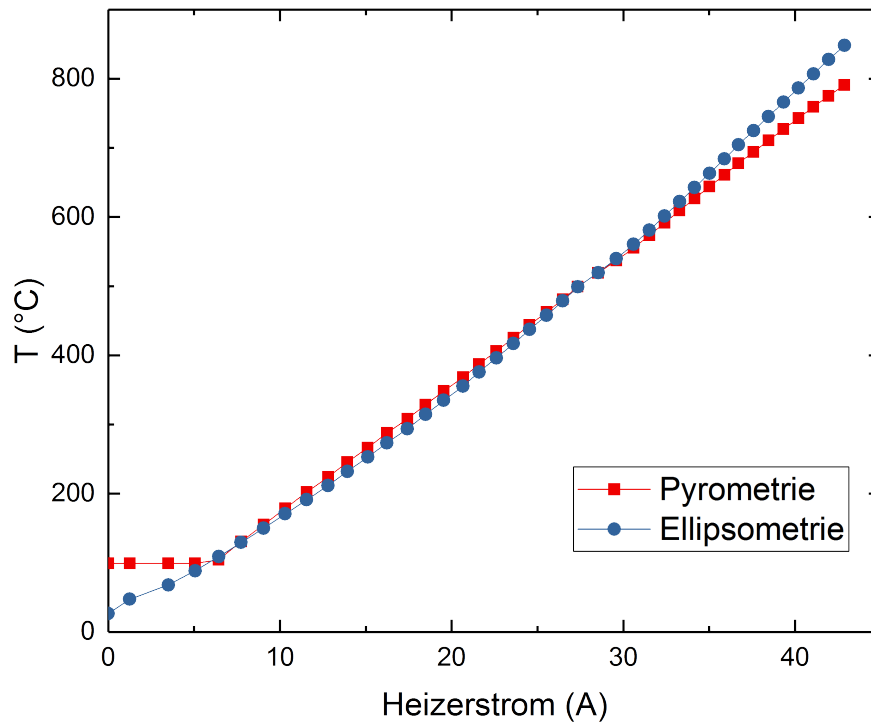


Abb. 3.15.: Temperaturvergleich zwischen Pyrometer und Ellipsometrie.

Trotz der Abweichung zwischen den beiden Temperaturmessungen liefern beide Techniken stabile und reproduzierbare Werte. Daher wird die Kalibrierung zwischen Temperatur und Heizerstrom mittels der Methode der Intensitätsoszillation durchgeführt, da mit dieser auch geringfügige Änderungen detektiert werden können. Die Temperaturmessung durch das Pyrometer kann als allgemeine Temperaturkontrolle verwendet werden, um grundlegende Veränderungen der Depositionstemperatur bei dem Wachstum der einzelnen Proben zu beobachten.

Experimentelle Methoden

Für die Charakterisierung der strukturellen, magnetischen und elektronischen Eigenschaften der gewachsenen Heterostrukturen werden verschiedene Messtechniken verwendet, welche in diesem Kapitel vorgestellt werden sollen. Das phasenreine Wachstum und die kristallographische Orientierung der Proben konnte in Röntgenbeugungsexperimenten in θ - 2θ - Geometrie (XRD) nachgewiesen werden. Röntgenreflektometrie (XRR) wurde dagegen für die Bestimmung der Gesamtschichtdicken sowie der einzelnen Lagen genutzt. Der in-plane Spannungszustand wurde durch die Aufnahme von Reziproken Raumkarten (RSM) nachgewiesen. Zur Verifikation der für ein lagenreines Wachstum notwendigen glatten Probenoberflächen wurden Aufnahmen mittels Rasterkraft- (AFM) und Rasterelektronenmikroskopie (REM) aufgenommen, wogegen das lagenreine Wachstum mit transmissionselektronenmikroskopischen Aufnahmen (TEM) von Querschnitts-Lamellen der Heterostrukturen überprüft wurde. Mit Messungen im MPMS und PPMS erfolgen abschließend die Untersuchung der Temperatur- und der Feldabhängigkeit der magnetischen und elektronischen Eigenschaften.

4.1. Röntgenmethoden

Röntgenbeugungsexperimente bieten eine Vielzahl an Methoden, mit denen detaillierte Informationen über die strukturellen Eigenschaften des untersuchten Systems gewonnen werden. In diesem Abschnitt soll auf die in dieser Arbeit verwendeten Techniken näher eingegangen werden. Diese sind die Phasenanalyse mittels klassischer Bragg-Brentano Geometrie (XRD), die Schichtdickenanalyse durch Röntgenreflektometrie (XRR) und die Analyse des Spannungszustands der Dünnschichten durch Reziproke Raumkarten (RSM). Eine ausführlichere Beschreibung weiterer Messmethoden kann beispielsweise in [129,130] nachgeschlagen werden.

Für die Messungen wurde anfangs das am Lehrstuhl vorhandene kommerzielle *X'Pert* Diffraktometer der Firma Philips [131] und anschließend das neue *Empyrean* der Firma Malvern Panalytical GmbH [132] genutzt. Beide Diffraktometer verwenden als Röntgenquelle eine Kupferanode, deren Strahlung mittels optischer Elemente auf die charakteristische Cu K_α –Strahlung monochromatisiert wird. Wegen der Spin-Bahn Wechselwirkung spaltet die Cu K_α –Strahlung in separate $K_{\alpha,i}$ –Linien auf, die aber durch die Linienverbreiterung in Dünnschichten zum Teil nicht voneinander zu trennen sind, sondern in einem einzelnen breiten Peak resultieren. In diesem Fall wird als Wellenlänge der gewichtete Mittelwert der $K_{\alpha,i}$ –Linien verwendet. Dies ist für die im *X'Pert* aufgenommenen Beugungsbilder nötig. Das *Empyrean* dagegen bietet die Möglichkeit über einen Hybridmonochromator im Strahlengang nur die $K_{\alpha,1}$ –Strahlung für die Messung zu verwenden.

Röntgenstrahlung	λ (Å)
$K_{\alpha,1}$	1,54056
$K_{\alpha,2}$	1,54439
$K_{\bar{\alpha}}$	1,54183

Tab. 4.1.: Wellenlänge der Kupfer $K_{\alpha,i}$ –Linien, sowie dem gewichteten Mittel $K_{\bar{\alpha}}$.

4.1.1. Klassische Röntgenbeugung

Bei der klassischen Röntgenbeugung befinden sich Röntgenquelle, Probe und Detektor in einer Geometrie, die auf Bragg und Brentano zurückgeht [133]. Diese ist in Abbildung 4.1 zu sehen. Röntgenröhre und Detektor sind im selben Abstand R zur Probe angebracht und bewegen sich auf dem Messkreis parallel mit $2 \cdot \omega = 2\theta$. Die Strahldivergenz lässt sich durch die Verwendung von verschiedenen Schlitzblenden einstellen. Im *Empyrean* konnte durch die Wahl der Primäroptik die Divergenz zusätzlich verbessert werden.

Die Beugungseffekte beruhen auf der Wechselwirkung von elektromagnetischen Wellen mit Materie. In klassischen Experimenten können im Wesentlichen nur die Effekte beobachtet werden, die auf der elastischen Thomsonstreuung beruhen. Diese lässt sich mit einer kinematischen Theorie beschreiben, bei welcher der einfallende und der gestreute Strahl durch ebene Wellen mit Wellenvektor \vec{k}_i bzw. \vec{k}_s beschrieben werden. Damit lässt sich der Streuvektor $\vec{Q} = \vec{k}_i - \vec{k}_s$ definieren [55]. Wegen der elastischen Streuung sind die Wellenvektoren von Primär- und Sekundärstrahl betragsmäßig gleich $|\vec{k}_i| = |\vec{k}_s| = 2\pi/\lambda$. Für den Streuvektor \vec{Q} ergibt sich damit betragsmäßig $|\vec{Q}| = 4\pi/\lambda \cdot \sin\left(\frac{2\theta}{2}\right)$.

Bei einem periodischen Gitter mit Gittervektor \vec{R}_n , welches durch die primitiven Gittervektoren $\{\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3\}$ aufgespannt wird und aus einer j -atomigen Basis

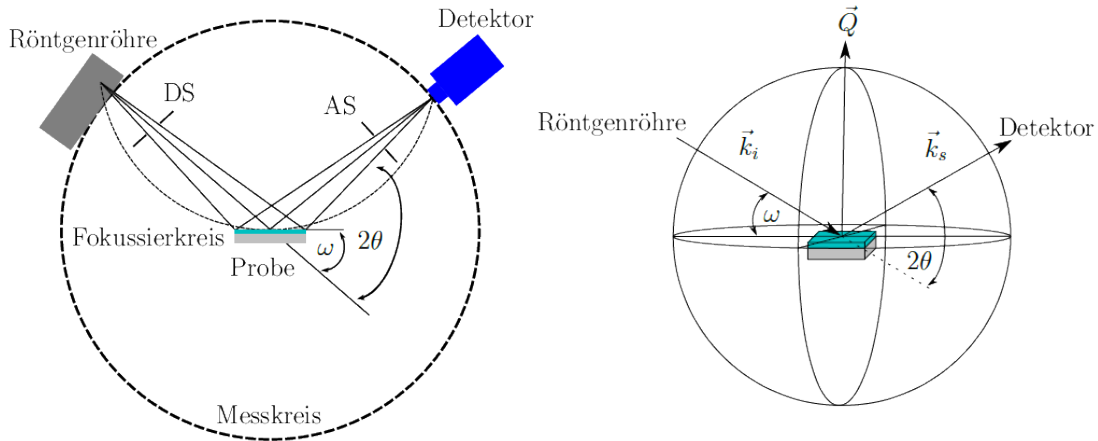


Abb. 4.1.: Darstellung der für die Röntgenbeugung verwendete Bragg-Brentano Geometrie (*links*) und der Definition des Streuvektors \vec{Q} mit dem unter dem Winkel ω einfallenden Wellenvektor \vec{k}_i und dem unter dem Winkel 2θ gestreuten Wellenvektor \vec{k}_s . Abbildung nach M. Birkholz, *Thin Film Analysis by X-Ray Scattering*, Copyright (2005) [129], mit Erlaubnis von Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.

besteht, ist die Intensität proportional zum Quadrat des Strukturfaktors

$$F(\vec{Q}) = \overbrace{\sum_n e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_n}}^{\text{Gitter}} \overbrace{\sum_j f_j(\vec{Q}) \cdot e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}_j}}^{\text{Basis}} \quad (4.1)$$

des betrachteten Kristalls [130]. Die Stärke mit der das Basisatom am Ort \vec{r}_j streut ist durch den atomaren Streufaktor $f_j(\vec{Q})$ gegeben und kann beispielsweise in [134] nachgeschlagen werden.

Wegen der Abhängigkeit des Strukturfaktors vom Streuvektor \vec{Q} ergibt sich für den Gitteranteil aus Gleichung (4.1), dass dieser nicht verschwinden darf. Dies ist gleichbedeutend mit der Bedingung [130]

$$\vec{Q} \cdot \vec{R}_n = 2\pi \cdot n$$

und kann vom Streuvektor nur dann erfüllt werden, wenn er einem reziproken Gittervektor $\vec{G}_{(hkl)}$ entspricht. Der Zusammenhang zwischen reziproken Gittervektor und Streuvektor wird auch als Laue-Bedingung

$$\vec{G}_{(hkl)} = \vec{Q} = \vec{k}_i - \vec{k}_s \quad (4.2)$$

bezeichnet [55]. Über geometrische Umformungen kann sie in die Bragg-Bedingung

$$n\lambda = 2d_{(hkl)} \cdot \sin\left(\frac{2\theta}{2}\right) \quad (4.3)$$

überführt werden. Der Parameter $d_{(hkl)}$ gibt den Abstand zwischen zwei (hkl) – Netzebenen an, n ist die Ordnung des Reflexes.

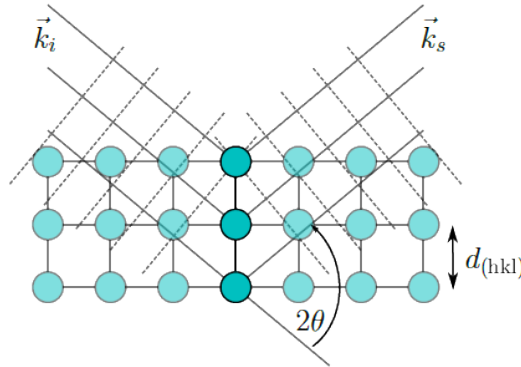


Abb. 4.2.: Herleitung der Bragg-Bedingung über die Interferenz zwischen Wellenstrahlen, die an verschiedenen Netzebenen gestreut werden.

4.1.2. Röntgenreflektometrie

Trifft der einfallende Röntgenstrahl unter streifendem Einfall ($2\theta \lesssim 10^\circ$) auf die Probe, so wird der Streuvektor \vec{Q} betragsmäßig kleiner als alle möglichen reziproken Gittervektoren $\vec{G}_{(hkl)}$. Die in der Bragg-Bedingung beschriebene Interferenzbedingung kann somit nicht mehr durch die atomaren Abstände der Netzebenen erfüllt werden. In genügend dünnen Schichten können dennoch nach Überschreitung des kritischen Winkels θ_c der Totalreflexion im Beugungsbild Oszillationen beobachtet werden, die durch Interferenz zwischen dem an der Probenoberfläche reflektiertem und dem an der Grenzfläche zwischen Probe und Substrat gestreuten Strahl erzeugt werden. Dies wurde 1931 als erstes von Heinz Kiessig [135] beobachtet, weshalb man die Oszillationen auch als *Kiessig fringes* bezeichnet. Aus ihrer Winkelabhängigkeit lässt sich die Schichtdicke d eines einzelnen Schichtsystems über

$$\theta_m^2 = \theta_c^2 + \left(\frac{\lambda}{2d}\right)^2 \cdot m$$

bestimmen [129], wobei m die Ordnung des Oszillationsmaxima und θ_m der zugehörige Winkel ist.

Bei Heterostrukturen wird der Röntgenstrahl wie bei der Reflexion von sichtbarem Licht (vgl. Abschnitt 3.2.2) innerhalb der Probe mehrfach gebrochen. Um dies auswerten zu können, muss die Röntgenreflektometrie simuliert und an die Messung angepasst werden. Dafür wird das von Macke *et al.* am Max-Planck-Institut für Intelligente Systeme in Stuttgart entwickelte Programm **ReMagX** [136] verwendet. **ReMagX** berechnet auf Basis der Reflexion von sichtbarem Licht die Fresnel-Koeffizienten, addiert diese iterativ durch den Parratt-Algorithmus [137]

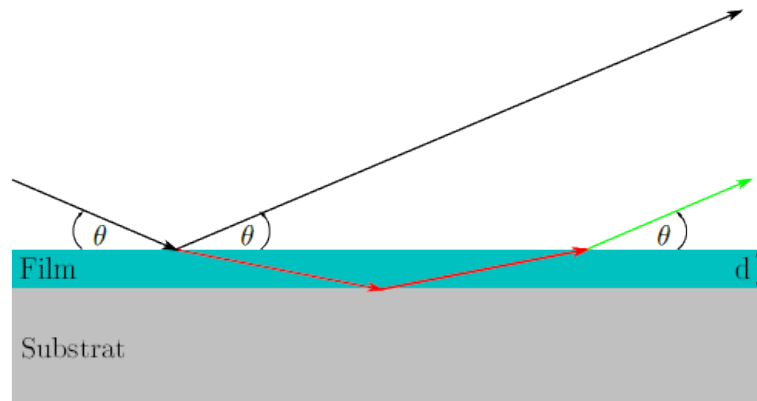


Abb. 4.3.: Schematische Darstellung des reflektierten und des gebrochenen Röntgenstrahls bei der Röntgenreflektometrie an einem Einschicht-System.

phasenrichtig auf und wertet die Simulation aus. Der dafür benötigte komplexe Brechungsindex $n = 1 - \delta - i\beta$ [129] der einzelnen Schichten lässt sich aus dem Einheitszellenvolumen und den tabellierten Streuamplituden der Elemente, wie sie beispielsweise in der Chantler-Tabelle [138] aufgeführt sind, bestimmen. Den Einfluss rauer Grenzflächen beachtet das Programm, indem es den Brechungsindex an der Grenzfläche stetig mittels der Nevot-Croce Methode [139] von der einen in die andere Lage überführt.

Folglich sind mittels der Simulation der Reflektometrie Aussagen über die Schichtdicken der einzelnen Lagen innerhalb einer Heterostruktur sowie der Schärfe der Grenzflächen zwischen ihnen möglich.

4.1.3. Reziproke Raumkarten

Reziproke Raumkarten werden im Bereich der Dünnschichtcharakterisierung unter anderem dazu verwendet den Verspannungszustand einzelner Lagen des Schichtsystems zu bestimmen. Bei der Messung wird sukzessive um einen festen Gitterpunkt (hkl) von Substrat und Dünnschicht der reziproke Raum abgetastet. Hierfür werden 2 Messtechniken miteinander kombiniert [129]:

1. **2θ –Scan:** Bei dieser Messmethode wird der Einfallswinkel ω konstant gehalten und der Streuwinkel 2θ geändert. Dies führt zu einer Änderung der Länge und Orientierung des Streuvektors \vec{Q} .
2. **ω –Scan:** Hier wird unter festem Streuwinkel 2θ der Einfallswinkel ω variiert. Durch den festen Wert von 2θ wird bei diesem Messprinzip nur die Richtung des Streuvektors \vec{Q} geändert, jedoch nicht die Länge.

Außerdem wird ein asymmetrischer bzw. **Offset-Scan** durchgeführt, damit Rückschlüsse auf den Verspannungszustand der Probe möglich werden [129]. Im Offset-Scan stehen 2θ und ω im Verhältnis $\frac{2\theta}{2} = \omega + \text{Offset}$, wobei der Offset positiv (streifender Einfall) oder negativ (streifender Ausfall) sein kann. Für den Fall eines verschwindenden Offsets erhält man den Spezialfall der symmetrischen Bragg-Brentano Geometrie.

Bei der Messung der reziproken Raumkarte am *Empyrean* kann durch die Verwendung des Hybridmonochromators verhindert werden, dass durch die Kupfer K_α Dublette ein Doppelpeak-Signal auftritt. Aus den aufgenommenen $(\omega, 2\theta)$ Paaren können vom Streuvektor die in-plane und die out-of-plane Komponente

über

$$Q_{\text{in-plane}} = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{2\theta}{2}\right) \sin\left(\frac{2\theta}{2} - \omega\right)$$

$$Q_{\text{out-of-plane}} = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{2\theta}{2}\right) \cos\left(\frac{2\theta}{2} - \omega\right)$$

bestimmt [140] werden. Anschließend können die Intensitäten farbkodiert in einem Q -Raster aufgetragen werden.

Bei der Auswertung der Reziproken Raumkarten geht man davon aus, dass für jeden reziproken Gittervektor eine Basis existiert, in welcher der Streuvektor die Form

$$\vec{Q} = \frac{Q_{\text{in-plane}}}{|\vec{b}_1|} \cdot \vec{b}_1 + \frac{Q_{\text{out-of-plane}}}{|\vec{b}_2|} \cdot \vec{b}_2$$

hat [43]. In einem vollständig verspannten Dünnsfilm übernimmt das Schichtsystem in-plane die Gitterperiodizität des Substratmaterials, d.h. es gilt $\vec{b}_{1,\text{Film}} = \vec{b}_{1,\text{Substrat}}$. Somit besitzen Film und Substrat im vollverspannten Zustand dieselbe in-plane Komponente des Streuvektors. Bei einsetzender Relaxierung sind $\vec{b}_{1,\text{Film}}$ und $\vec{b}_{1,\text{Substrat}}$ lediglich parallel zueinander, weshalb die Komponenten des Streuvektors nicht mehr identisch sind. Der Filmpeak wandert im relaxierten Film in Richtung der Ursprungsgeraden.

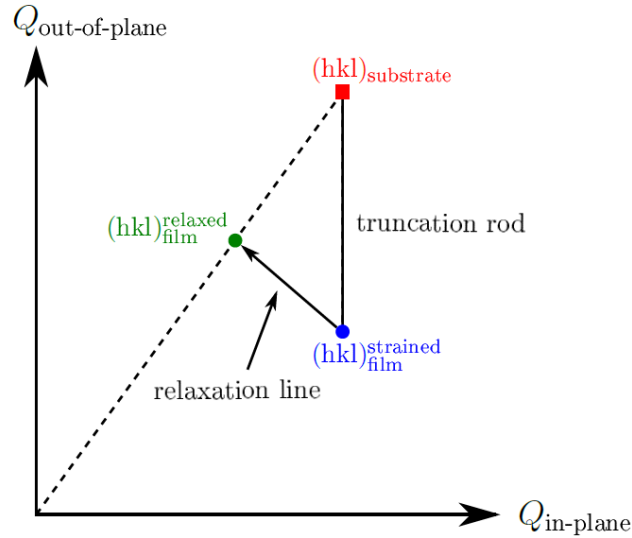


Abb. 4.4.: Positionierung eines verspannten (blau) und eines relaxierten (oliv) Dünnsfilms in Bezug zum Substratpeak (rot) für (pseudo-) kubische Systeme. Abbildung nach T. Baumbach, V. Holý und U. Pietsch, *High-Resolution X-Ray Scattering*, Copyright (2011) [141], mit Erlaubnis von Springer Nature.

4.2. Mikroskopie

Um ein lagenreines Wachstum der einzelnen Schichten zu erhalten ist es notwendig, dass die Lagen mit einer glatten Oberfläche wachsen. Zur Kontrolle des Oberflächenwachstums wurden sowohl Aufnahmen mittels Rasterkraftmikroskopie als auch elektronenmikroskopischen Untersuchungen durchgeführt. Das Rasterkraftmikroskop stellt eine Möglichkeit dar, größere Bereiche (bis zu $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$) der Probenoberfläche abzubilden.

Eine höhere Ortsauflösung der Probenaufnahmen erzielt die Elektronenmikroskopie, da durch die Beschleunigung der Elektronen leicht kleine de-Broglie Wellenlängen erreicht und dadurch das Abbe-Limit verkleinert werden kann. Der eingestrahlte primäre Elektronenstrahl trifft auf die Probe, wo die Primärelektronen in ein bestimmtes Volumen eindringen und dort mit den Atomen wechselwirken [142]. Die dabei auftretenden Prozesse können grob in elastische und inelastische Streuungen, sowie sekundäre Effekte gegliedert werden.

4.2.1. Rasterkraftmikroskopie

Die Oberflächen der gewachsenen Schichtsysteme werden mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM) untersucht. Dabei wird eine Si-Spitze, die an einem Ende eines Biegebalkens (engl. *Cantilever*) befestigt ist, in einem konstanten Abstand über die Probenoberfläche geführt.

Über einen elektronischen Steuerkreis wird der Abstand zwischen Probe und Cantilever so justiert, dass auf den Cantilever eine konstante Kraft wirkt. Der zugehörige Abstand wird als Soll-Wert für den Regelkreis verwendet. Beim anschließenden Abrastern der Oberfläche wirkt auf den Cantilever eine Van-der-Waals Wechselwirkung, deren Stärke ortsabhängig ist, und führt zu einer Verbiegung des Cantilevers [143]. Ist der Abstand zwischen Probenoberfläche und Cantilever kleiner als der vorher eingestellte Soll-Wert, so ist die Anziehung stärker und der Cantilever wird stärker verbogen. Bei einer schwächeren Verbiegung des Cantilevers ist der Abstand zur Probenoberfläche größer als vorgegeben. Der Regelkreis ändert den Abstand zwischen Cantilever und Probe so, dass der Abstand dem Soll-Wert entspricht. Die ortsabhängige Nachregelung der Cantileverhöhe stellt eine 1 : 1 Korrespondenz zur Oberflächentopographie dar.

4.2.2. Elektronenmikroskopie

Bei der Elektronenmikroskopie unterscheidet man zwischen der Rasterelektronenmikroskopie und der Transmissionselektronenmikroskopie, die im Folgenden kurz beschrieben werden sollen. Für detailliertere Erläuterungen zum Aufbau und der Funktionsweise sei auf die Fachliteratur, beispielsweise [144, 145] verwiesen.

Rasterelektronenmikroskopie

Im Rasterelektronenmikroskop wird der Elektronenstrahl typischerweise mit einer Spannung von 30 kV beschleunigt. Klassischerweise werden bei der Rasterelektronenmikroskopie dicke, für Elektronen nicht transparente Proben untersucht, so dass die Messsignale ausschließlich aus oberflächennahen Bereichen stammen. Die detektierbaren Signale stammen dabei am häufigsten von Sekundär- und Rückstreuelektronen. Sekundärelektronen können nur aus einem kleinen Volumen aus oberflächennahen Schichten austreten, und werden für die Abbildung der Oberflächentopographie verwendet. Bei Aufnahmen, in denen Rückstreuelektronen für die Abbildung genutzt werden, ist ein höherer Materialkontrast zu erkennen [142]. Für die Aufnahmen der Oberflächenstruktur wird das am Lehrstuhl vorhandenen Crossbeam 550 Rasterelektronenmikroskop der Firma Carl Zeiss AG [146] genutzt.

Transmissionselektronenmikroskopie

Bei der Transmissionselektronenmikroskopie werden dünne, für Elektronen transparente Proben untersucht. Dafür wurden zunächst mittels fokussiertem Ionenstrahl (FIB) dünne Querschnittslamellen aus den Proben geschnitten. Zur Abbildung der lokalen Struktur und Chemie innerhalb des Schichtsystems wurde bei der Firma Thermo Fisher Scientific eine Transmissionselektronenmikroskop-Aufnahme mit dem HAADF-STEM Modus eines Titan Themis Z [147] aufgenommen, welches bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV betrieben wurde. Im STEM-Modus wird der auf wenige Ångström fokussierte Elektronenstrahl über die Lamelle gerastert. Die elastisch und inelastisch an der Probe gestreuten Elektronen werden anschließend auf den ringförmigen ADF- (annular dark field) und HAADF- (high-angle annular dark field) Detektoren gemessen [142]. Die ortsabhängig gemessenen Intensitäten $I(x,y)$ hängen dabei exponentiell von der Ordnungszahl Z der Elemente ab, wobei typischerweise $I \propto Z^{1.6-1.9}$ gilt [148, 149].

4.3. Magnetometrie

Die magnetischen Eigenschaften der Dünnschichten werden mit einem SQUID-Magnetometer (*superconducting quantum interference device*) des Typs MPMS¹ 3 der Firma Quantum Design [150] gemessen. Das MPMS 3 ermöglicht temperatur- und feldabhängige Messungen im Bereich von 2 K bis 400 K mit einem Maximalfeld von $\mu_0 H_{\max} = 7 \text{ T}$. Zuerst wird das Messprinzip des SQUID-Magnetometers kurz beschrieben. Anschließend wird die verwendete Methode des Hintergrundabzugs vorgestellt, mit dem das eigentliche Probensignal vom dem durch das Substrat hervorgerufene Untergrundsignal separiert wird, und erklärt warum der Hintergrundabzug benötigt wird. Für eine detaillierte Erklärung der Funktionsweise des SQUIDs wird auf entsprechende Fachliteratur, wie beispielsweise [23, 151] verwiesen.

Das SQUID-Magnetometer

Vor der Messung wird die Probe zunächst mittels GE-Lack (GE varnish) auf einen Quarzglasstab geklebt. Der GE-Lack wird verwendet, da dieser zum einen auch bei tiefen Temperaturen und zum anderen auf verschiedenen Materialien hält. Anschließend wird die Probe in den Detektorspulen des Gradiometers zentriert. Für die eigentliche Messung werden zunächst das Feld und die Temperatur stabilisiert. Im DC-Modus des SQUID-Magnetometers wird dann die Probe durch die Detektorspulen einmal vollständig in beide Richtungen bewegt. Die Magnetisierung M der Probe ruft in den Detektorspulen dabei eine Änderung des magnetischen Flusses ϕ hervor, wodurch eine Spannung $U_{\text{ind}} \propto \frac{d}{dt}\phi$ induziert wird. Diese Spannung wird über einen supraleitenden Flusstransformator in ein rf-SQUID eingekoppelt. Die abfallende Spannung am rf-SQUID wird positionsabhängig aufgezeichnet und kann gemäß [152] durch die Gleichung

$$V_{\text{SQUID}}(z) = V_{\text{Offset}} + a \cdot (z - z_0) + b \cdot \left(2 [R^2 + ((z - z_0) + d)^2]^{-3/2} - [R^2 + (\Lambda + (z - z_0) + d)^2]^{-3/2} - [R^2 + (-\Lambda + (z - z_0) + d)^2]^{-3/2} \right)$$

ausgewertet werden. Die Magnetisierung ist dabei nach [152] proportional zu dem Fitparameter b . Über eine Referenzmessung mittels einer Pd-Standardprobe kann die gerätespezifische Proportionalitätskonstante bestimmt werden. Die hohe Sensitivität dieser Art von Magnetometrie ergibt sich durch die induktive Kopplung

¹Magnetic Property Measurement System

zwischen Gradiometer und rf-SQUID, da durch die Flussquantisierung im SQUID auch geringe Magnetisierungen detektiert werden können.

Der Hintergrundabzug

Bei der Messung einer Probe ist in dem aufgenommenen Signal nicht nur der Anteil der eigentlichen Dünnschicht enthalten, sondern durch das verwendete diamagnetische SrTiO_3 Substrat [153] wird ebenfalls ein Beitrag zur Magnetisierung erzeugt. Um die deutlich kleineren Signale der gewachsenen Schichtsysteme analysieren und vergleichen zu können, ist es notwendig die Beiträge, die nicht zum eigentlichen Dünnschicht gehören vorher abzuziehen.

Dazu wird zunächst die Magnetisierung des unbeschichteten Substrats gemessen. Anschließend wird auf diesem Substrat ein Film gewachsen und die Probe erneut in das MPMS eingebaut. Hierbei ist darauf zu achten, dass die Probe auf dieselbe Weise gemessen wird, d.h. gleicher Probenstab, dieselbe Zentrierung im Gradiometer sowie identische Messsequenz. Aus den aufgenommenen Messdaten und den Rohdaten beider Messungen kann dann das Hintergrundsignal abgezogen und das reine Probensignal extrahiert werden.

Der Hintergrundabzug für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Magnetisierungsmessungen wurde mit dem Programm **MPMS Analyzer** durchgeführt, das von Maximilian Seidler im Rahmen seiner Bachelorarbeit [154] entwickelte.

4.4. Elektrischer Transport

Für die Messungen der Feld- und Temperaturabhängigkeit des elektrischen Transports wird ein Physical Property Measurement System (PPMS) der Firma Quantum Design [155] genutzt. Das am Lehrstuhl verwendete Gerät erlaubt Messungen im Temperaturbereich $T = 2\text{ K} \dots 400\text{ K}$ und mit dem eingebauten Magneten lassen sich Felder bis $\mu_0 H_{\text{max}} = 14\text{ T}$ realisieren.

Zusätzlich wird die vorhandene Elektrische Transport Option (ETO) [156] des PPMS verwendet. Mit dieser Messoption wird bei der Widerstandsmessung in 4-Punkt Geometrie durch eine Präzisionsstromquelle ein sinusförmiger AC-Strom eingepreßt und die abfallende AC-Spannung mittels Vorverstärkern, die an einen digitalen Signalprozessor (DSP) gekoppelt sind, gemessen. Der DSP filtert aus der Antwortfunktion die Anteile heraus, die nicht dieselbe Frequenz und Phase wie der Strom besitzen. Dadurch können Einflüsse von frequenzabhängigem Rauschen, Gleichspannungsoffsets oder instrumentale Signalverschiebungen aus dem Messsignal eliminiert werden. Durch die Vorverstärker besitzt die ETO ein Grundrauschen von $10\text{ n}\Omega$ und kann Widerstände bis $5\text{ G}\Omega$ messen.

Der Horizontalrotator

Durch die Verwendung eines Horizontalrotators [157] können Messungen mit zur Probenoberfläche verdrehten Magnetfeldern realisiert werden. Der Rotator ermöglicht die Probe im Winkelbereich von -10° bis 370° zu drehen, wobei 0° der Orientierung mit dem Feld senkrecht zur Probenoberfläche entspricht. Die Orientierung der Drehachse ist senkrecht zur Transferstange des Rotators.

Dadurch können das out-of-plane (oop) orientierte Magnetfeld und die Probennormale \vec{n} gegeneinander verdreht werden, wodurch das Magnetfeld H in eine Komponente senkrecht (H_\perp) und eine Komponente parallel (H_\parallel) zur Probenoberfläche separiert werden

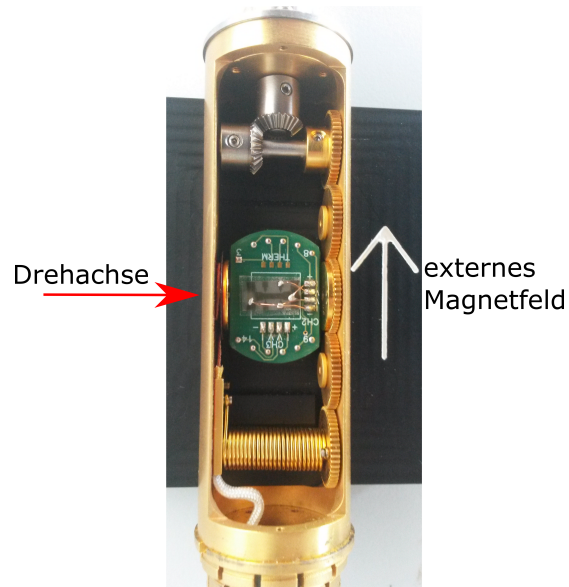


Abb. 4.5.: Darstellung des verwendeten PPMS-Horizontalrotators mit eingebauter Probe bei 90° .

kann. In Abbildung 4.5 ist der verwendete Rotator mit einer eingebauten Probe dargestellt.

4.5. Mikrostrukturierung

Für die Messungen des transversalen Magnetwiderstands und des Hall-Effekts wurden die Dünnsfilme in einer Hall-Bar-Geometrie mit einem von Dr. Stefan Meir entwickelten Verfahren [158] mikrostrukturiert. Dafür werden die Proben mit Leitsilber auf einen Probenhalter geklebt und mit einer Schattenmaske abgedeckt. Anschließend wird der Probenhalter in der Argon-Ionen Ätze mittig im Argon-Strahl positioniert. Um mögliche Inhomogenitäten im Strahlprofil zu kompensieren, wird die Probe zusätzlich in Rotation gebracht. Durch ein aktives Shuttersystem wird ein präziser Ätzprozess gewährleistet. Die Ätzraten liegen im Bereich von $\sim 2 \text{ nm/min}$, wodurch die Mikrostrukturierung je nach Schichtdicke eine Ätzzeit zwischen 1 min (einzelne Bilage aus 2 Monolagen SrIrO_3 und 5 Monolagen SrRuO_3) und 15 min (10 Wiederholungen der einzelnen Bilage) benötigt.

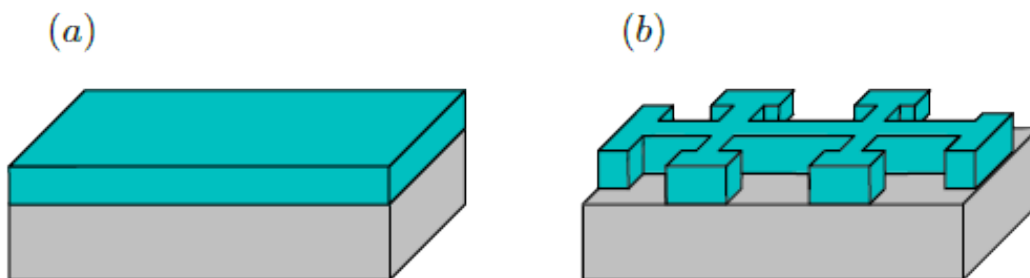


Abb. 4.6.: Schematische Darstellung des Lithographieprozess. In der mit der MAD hergestellte Probe (a) wird mit der Schattenmasken-Technik die gewünschte Hall-Bar-Geometrie strukturiert (b).

Magnetotransport in Heterostrukturen

An der Grenzfläche zwischen Materialien mit verschiedenen Eigenschaften kann es zu neuartigen physikalischen Effekten kommen. So fand beispielsweise B. Meir [159] Supraleitung an der Grenzfläche zwischen den Perowskiten BaBiO_3 und BaPbO_3 .

Den Anfang dieses Kapitels bildet eine Einführung in die Eigenschaften der beiden Materialsysteme und eine Beschreibung möglicher auftretender Grenzflächeneffekte. Anschließend erfolgt nach den Vorarbeiten zum monolagengenauen Wachstum der Einzelsysteme eine strukturelle Charakterisierung der hergestellten $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Heterostrukturen mittels verschiedener Röntgenmessungen, sowie der magnetischen Eigenschaften durch Messungen im MPMS.

In temperatur- und winkelabhängigen Messungen des Hall-Effekts konnte durch die Separation des normalen und des anomalen Hall-Effekts das Auftreten von Skyrmionen beobachtet werden. Diese zeigten eine große Robustheit gegenüber Magnetfelddrehungen aus der Probennormalen.

Aus den magnetischen Eigenschaften und den Ergebnissen der Hall-Effekt Messungen konnte für den Magnetwiderstand ein Anpassungsmodell erstellt werden, mit dem die temperatur- und winkelabhängigen Messungen in guter Übereinstimmung beschrieben werden können. Aus der Winkelabhängigkeit konnten zudem Rückschlüsse auf eine uniaxiale magnetische Anisotropie gezogen werden, die in Übereinstimmung mit den Magnetisierungsmessungen stehen.

5.1. Motivation und Einführung in die Materialsysteme SrRuO_3 und SrIrO_3

Skyrmionen bilden einen Zugang zu neuartiger und faszinierender Physik. Da Skyrmionen topologisch geschützt sind [59], d.h. ihre nicht-kollineare Spinstruktur nicht durch stetige Transformationen in die ferromagnetische Ordnung des umgebenden magnetischen Materials überführt werden kann [60], ist es möglich sie mit einem teilchenartigen Charakter zu betrachten [10]. Dieser soll in sogenannten Racetrack-Speichern für die Datenspeicherung verwendet werden [11, 20]. Andere Ansätze verfolgen die Idee, Skyrmionen für neuromorphes Rechnen zu verwenden [16, 160].

Eine der Möglichkeiten in einem magnetischen System Skyrmionen zu generieren und zu stabilisieren bildet die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung. In Dünnschichten kann diese durch Kombination von (anti)ferromagnetischen Schichten und Lagen aus nichtmagnetischen Materialien mit starker Spin-Bahn Wechselwirkung erzeugt werden. An der Grenzfläche zwischen den unterschiedlichen Lagen ergibt sich ein Bruch der Inversionssymmetrie, der die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung hervorruft.

Die Klasse der Perowskite bietet dafür eine Vielzahl an möglichen Kombinationen für das Wachstum solcher Heterostrukturen. So können mit Perowskit-Kombinationen aufgrund ihrer sehr ähnlichen (pseudo) kubischen Kristallstruktur beispielsweise Heterostrukturen mit sehr scharfen Grenzflächen realisiert werden. In Bilagen aus ferromagnetischem $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ und dem starken Spin-Bahn gekoppelten Halbmetall SrIrO_3 konnte beispielsweise ein topologischer Hall-Effekt gefunden werden, dessen Ursache mit dem Symmetriebruch an der Grenzfläche erklärt werden konnte [161]. Bei Bilagen aus ferroelektrischen BaTiO_3 und ferromagnetischen SrRuO_3 [162] konnte über den ferroelektrischen Proximity-Effekt die Stärke der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung kontrolliert werden.

Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Heterostrukturen aus 5 Monolagen SrRuO_3 und 2 Monolagen SrIrO_3 wurde 2016 durch Matsuno *et al.* [17] in Bilagen, die auf (001) orientierten SrTiO_3 Substraten aufgewachsen wurden, als erstes ein zusätzlicher Beitrag im Hall-Effekt gefunden, der als topologischer Hall-Effekt identifiziert wurde.

5.1.1. Das Materialsystem SrRuO_3

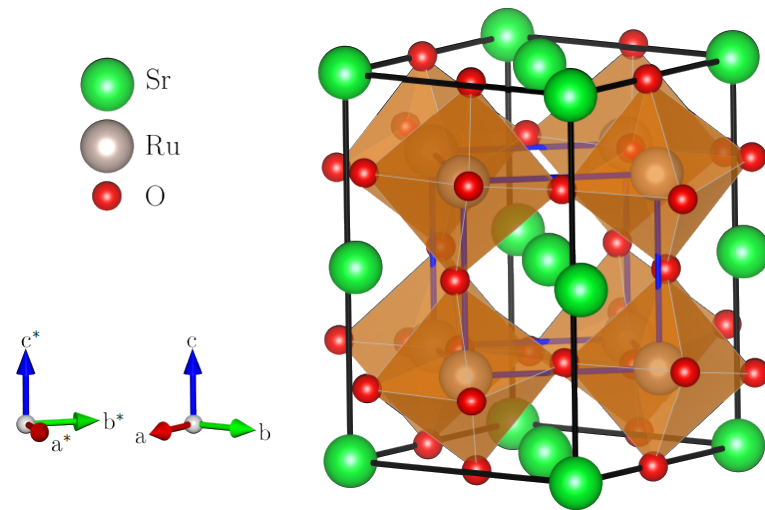


Abb. 5.1.: Kristallstruktur von SrRuO_3 visualisiert mittels VESTA [31] nach kristallographischen Daten aus Jiang *et al.* [163]. Schwarz ist die orthorhombisch verzerrte Perowskit-Struktur des Systems (a,b,c) und in blau die pseudo kubische Einheitszelle des Untersystems (a^*,b^*,c^*) dargestellt.

Strukturelle Eigenschaften

SrRuO_3 kristallisiert in der orthorhombisch verzerrten Perowskit-Struktur vom GdFeO_3 -Typ (Raumgruppe: $Pbnm$ (No. 62), Gitterkonstanten: $a = 5,5670 \text{ \AA}$, $b = 5,5304 \text{ \AA}$, $c = 7,8446 \text{ \AA}$ [163]), welche in Abbildung 5.1 mit der schwarzen Einheitszelle dargestellt ist. Diese enthält 4 formale Einheiten des SrRuO_3 . Die pseudo kubische (pc) Einheitszelle ist in blau ebenfalls in Abbildung 5.1 zu sehen. Diese ist gegenüber der orthorhombischen um 45° um die c -Achse verdreht und enthält genau eine formale Einheit. Die pseudo kubische Gitterkonstante lässt sich nach [38] zu $a_{\text{pc}} = 3,923 \text{ \AA}$ bestimmen. Das auf dem A-Platz befindliche Sr-Kation hat eine Valenz von 2+ und das Ru-Kation auf dem B-Platz von 4+ [164].

Magnetische und elektronische Eigenschaften

SrRuO_3 ist ein itineranter Ferromagnet, dessen Curie-Temperatur in Einkristallen und relaxierten Dünnschichten bei $T_C = 160 \text{ K}$ und bei verspannten Dünnschichten auf SrTiO_3 bei $T_C = 150 \text{ K}$ liegt [1]. Durch das starke Kristallfeld spalten die $4d$ Bänder des Ru^{4+} auf (vgl. Abschnitt 2.1.1) und seine vier Elektronen verteilen sich auf die t_{2g} -Niveaus, so dass sich SrRuO_3 im sogenannten Low-Spin Zustand mit

Gesamtspin $S = 1$ befindet [1, 165]. Messungen von Okamoto *et al.* [166] mittels zirkular magnetischen Röntgendichroismus (XMCD) und theoretische Berechnungen [164] legen nahe, dass das orbitale Moment des Grundzustands von $2\mu_B/\text{Ru}$ zu $1,6\mu_B/\text{Ru}$ reduziert wird. Rechnungen zur Bandstruktur erklären dieses reduzierte Moment durch eine starke Hybridisierung zwischen den $4d$ -Orbitalen des Rutheniums und den $2p$ -Orbitalen des Sauerstoffs [167]. Als Dünnschicht hängt die Richtung der leichten magnetischen Achse¹ in SrRuO_3 von der Verspannung durch das Substrat ab. Bei Filmen, die auf (001) orientiertem SrTiO_3 aufgewachsen wurden, zeigt die leichte Achse aus der Filmebene² heraus [168, 169]. Außerdem reduziert sich wegen der biaxialen Druckspannung durch das Substrat die Sättigungsmagnetisierung [170].

Im elektrischen Transport zeigt SrRuO_3 metallisches Verhalten. Oberhalb der Ordnungstemperatur hängt der Widerstand linear von der Temperatur ab. Unterhalb von T_C lässt sich SrRuO_3 mittels der Fermi-Flüssigkeits Theorie beschreiben [1]. Hall-Effekt Messungen zeigen Beiträge sowohl durch den normalen Hall-Effekt (OHE) als auch vom anomalen Hall-Effekt (AHE). Aus der normalen Hallkonstanten bestimmten Izumi *et al.* die Ladungsträgerdichte zu $n \approx 1,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, und zeigten den elektronenartigen Charakter der Ladungsträger [171].

Der anomale Hall-Effekt ist sensitiv auf die elektronische Struktur des Systems, die beispielsweise durch die Lage von Schnittpunkten der einzelnen Bänder generiert wird. Für SrRuO_3 zeigte sich in Rechnungen, dass es in der Bandstruktur mehrere Punkte gibt, an denen sich die Bänder schneiden oder berühren, wodurch sich eine nicht triviale Berry-Krümmung im Impulsraum ergibt [172, 173]. Mit steigender Temperatur zeigt sich bei der anomalen Hallkonstanten R_s ein Vorzeichenwechsel von negativ zu positiv [174]. Haham *et al.* [175] erklären diesen Wechsel damit, dass der (intrinsische) Berry-Phasen Beitrag und das (extrinsische) Side-Jump-Scattering unterschiedliche Vorzeichen aufweisen. Bei tiefen Temperaturen wird ρ_{AHE} durch die Berry-Phase, und damit der komplizierten Bandstruktur, dominiert und nimmt zu höheren Temperaturen ab, wodurch sich das Vorzeichen des anomalen Hall-Effekts ändert. Ziese *et al.* [176] fanden dagegen einen Zusammenhang zwischen der orthorhombischen Kristallstruktur und dem Vorzeichenwechsel im AHE. Welcher Mechanismus in SRO den anomalen Hall-Effekt dominiert ist bisher nicht abschließend geklärt. Zum Beispiel interpretieren Roy *et al.* [177] ihre Hall-Effekt Messungen so, dass die Positionen der Weyl-Kno-

¹engl.: easy axis

²engl.: out-of-plane

tenpunkte³ in der Bandstruktur durch ein Magnetfeld veränderlich sind. Dadurch wird die Berry-Phase direkt durch das externe Magnetfeld H beeinflusst und nicht nur durch die Magnetisierung M . Dies interpretierten sie als effektive Mischung zwischen normalen und anomalen Hall-Effekt.

Unterhalb der Curie-Temperatur hängt in ferromagnetischen Systemen der elektrische Widerstand zum einen vom Winkel zwischen magnetischen Feld und Filmebene, zum anderen vom Winkel zwischen der in der Filmebene liegenden Komponente des magnetischen Felds und der Stromrichtung ab. In SrRuO_3 kann dies mit einer generalisierten Form des anisotropen Magnetwiderstands (AMR) beschrieben werden [181]. Der Magnetwiderstand kann durch die Verspannung des Substrats beeinflusst werden. Lu *et al.* [180] konnten bei tiefen Temperaturen zeigen, dass bei einer Druckspannung durch das Substrat, zum Beispiel durch das Wachstum auf (110) NdGaO_3 (siehe Abb. 5.2(c)), sich ein negativer Magnetwiderstand für Magnetfelder senkrecht zur Filmebene (out-of-plane Richtung) ergibt, wogegen für Feldorientierungen in der Filmebene (in-plane Richtung) der Magnetwiderstand positiv ist. Bei einer Zugspannung, wie es beispielsweise beim Wachstum auf (001) KTaO_3 Substraten realisiert ist, ist für Feldorientierungen in out-of-plane Richtung ein positiver und bei einer Magnetfeldorientierung in der Filmebene ein negativer Magnetwiderstand zu beobachten. Für SrRuO_3 Dünnschichten auf SrTiO_3 ergibt sich damit für Magnetfeldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche ein negativer Magnetwiderstand. Dieser wird mit steigender Temperatur kleiner [182]. Der Magnetwiderstand in der Filmebene zeigt einen deutlichen Unterschied bei einer Magnetfeldorientierung parallel und senkrecht zur Stromrichtung. Gunnarsson [183] zeigte, dass diese Anisotropie von den Kristallrichtungen abhängt. Takiguchi *et al.* [184] fanden in hochqualitativen SrRuO_3 mit einem Restwiderstandsverhältnis $\text{RRR} \approx 84$ sowohl einen ungesättigten, positiven linearen Magnetwiderstand im Hochfeldbereich, als auch einen negativen, durch Chiralität induzierten Magnetwiderstand. Diese beiden Eigenschaften des Magnetwiderstands deuteten sie als Indizien für die Bildung von Weyl-Fermionen.

Reduziert sich die Filmdicke der SrRuO_3 Schicht auf wenige Monolagen (ML) ändern sich die elektronischen und magnetischen Eigenschaften drastisch. Ishigami *et al.* [178] fanden mittels SQUID-Magnetometrie und XMCD einen ferromagnetischen Zustand für Schichtdicken $d > 4$ ML und einen paramagnetischen Zustand für $d < 4$ ML. Daneben fanden verschiedene Gruppen, dass sich ein Metall-Isolator Übergang (MIT) für $d \approx 4$ ML–6 ML einstellt [185–188]. Bosch-

³engl.: Weyl-nodes

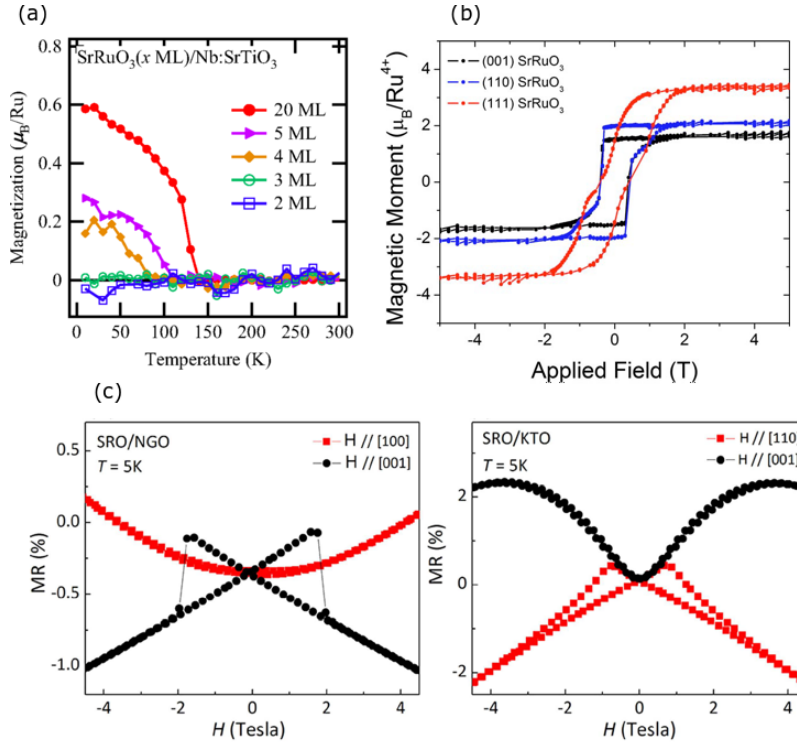


Abb. 5.2.: (a) Temperaturabhängige Magnetisierung für verschieden dicke SrRuO_3 Schichten auf (001) orientiertem Nb:SrTiO_3 . In Schichten mit mehr als 4 ML konnte ferromagnetisches Verhalten beobachtet werden. Abbildung aus Phys. Rev. B **92**, K. Ishigami *et al.*, *Thickness-dependent magnetic properties and strain-induced orbital magnetic moment in SrRuO_3 thin films*, Copyright (2015) [178], mit Erlaubnis der American Physical Society..

(b) Am Beispiel einer 24 nm dicken SrRuO_3 bei 10 K zeigt sich der Einfluss der vom Substrat induzierten Verspannung auf das magnetische Moment. Abbildung aus Appl. Phys. Lett. **96**, A. Grutter *et al.*, *Enhanced magnetism in epitaxial SrRuO_3 thin films*, Copyright (2010) [179], mit Erlaubnis von AIP Publishing.

(c) Der Magnetwiderstand für Magnetfeldorientierungen in der Filmebene (rot) und senkrecht zur Filmebene (schwarz) zeigt für Druckspannung (Wachstum auf NdGaO_3) und Zugspannung (Wachstum auf KTaO_3) unterschiedliches Verhalten. Abbildung aus Sci. Rep. **5**, W. Lu *et al.*, *Strain Engineering of Octahedral Rotations and Physical Properties of SrRuO_3 Films*, Copyright (2015) [180], mit Erlaubnis von Springer Nature.

ker *et al.* [189] konnten in einer Monolage SrRuO_3 , die sie in einer SrTiO_3 Umgebung eingelagert haben, metallisches und ferromagnetisches Verhalten finden. Beim Wachstum von SrRuO_3 kann an der Grenzfläche magnetische Unordnung auftreten, die mit abnehmender Schichtdicke den Magnetwiderstand stärker beeinflusst [190].

5.1.2. Das Materialsystem SrIrO_3

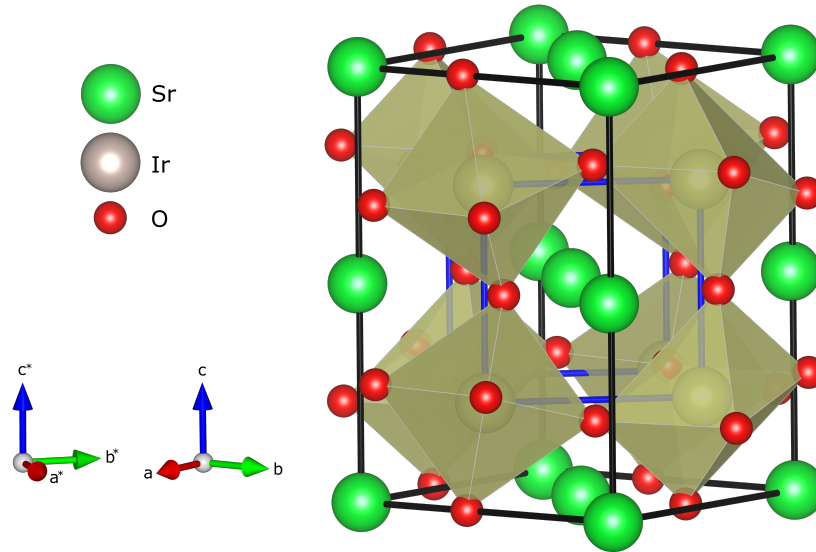


Abb. 5.3.: Kristallstruktur von SrIrO_3 visualisiert mittels VESTA [31] nach kristallographischen Daten aus Pan *et al.* [191]. Schwarz ist die orthorhombisch verzerrte Perowskit-Struktur des Systems (a, b, c) und in blau die pseudo kubische Einheitszelle des Subsystems (a^*, b^*, c^*) dargestellt.

Strukturelle Eigenschaften

Abhängig von dem Herstellungsverfahren kann SrIrO_3 in zwei verschiedenen Kristallstrukturen synthetisiert werden. Unter normalem Umgebungsdruck kristallisiert es in der monoklinen $6H$ Struktur (Raumgruppe: $C2/c$ (No. 15), Gitterkonstanten: $a = 5,6040 \text{ \AA}$, $b = 9,6256 \text{ \AA}$, $c = 14,1834 \text{ \AA}$, $\beta = 93,202^\circ$ [191]), wogegen es unter Hochdruck ($p \approx 40 \text{ kbar}$ [192]) in der orthorhombischen GdFeO_3 Perowskit-Struktur (Raumgruppe: $Pbnm$ (No. 62), Gitterkonstanten: $a = 5,60075 \text{ \AA}$, $b = 5,57115 \text{ \AA}$, $c = 7,89601 \text{ \AA}$ [191]) wächst. In Dünnschichten kann durch die Wahl des Substrats und der damit verbundenen Verspannung die Kristallstruktur beeinflusst werden. Auf (111) orientiertem SrTiO_3 erhält man die $6H$ Struktur und auf (001)- SrTiO_3 die Perowskit-Phase [193]. In der Perowskit-Phase ist die Kristallstruktur von SrIrO_3 vergleichbar mit der von SrRuO_3 (siehe Abbildung 5.3), und kann ebenfalls mittels einer pseudo kubischen Einheitszelle beschrieben werden. Die pseudo kubische Gitterkonstante lässt sich zu $a_{pc} = 3,948 \text{ \AA}$ berechnen. Die Valenzen des Kations auf dem A-Platz (Sr) ist $2+$ und auf dem B-Platz (Ir) $4+$.

Magnetische und elektronische Eigenschaften

Im korrelierten System SrIrO_3 spalten die t_{2g} -Zustände der $5d$ -Orbitale wegen der starken Spin-Bahn Wechselwirkung $\xi_{\text{SOC}} \approx 0,4\text{eV}$ in ein $J_{\text{eff}} = 1/2$ Niveau und zwei $J_{\text{eff}} = 3/2$ Niveaus auf. Die tiefer liegenden $J_{\text{eff}} = 3/2$ Zustände sind vollständig besetzt und der $J_{\text{eff}} = 1/2$ ist halb besetzt, wodurch sich ein semi-metallischer Grundzustand ergibt [194–196]. Der temperaturabhängige Verlauf des elektrischen Widerstands lässt sich mittels $\rho(T) = \rho_0 - \alpha T^{3/4} + \beta T^{3/2}$ beschreiben. Der Faktor α wird durch dreidimensionale schwache Lokalisierungseffekte und β durch die inelastische Streuung zwischen Elektronen und Bosonen bestimmt [197]. Bei dünneren Filmen ($d \approx 3\text{ nm}-4\text{ nm}$) durchläuft SrIrO_3 einen Metall-Isolator Übergang. Biswas *et al.* [192] erklären dies durch eine Erhöhung der Unordnung des Systems. Dadurch vollzieht der positive Magnetwiderstand, der in dickeren Schichten eine quadratische Feldabhängigkeit ($\propto H^2$) zeigt, einen Übergang zu einem negativen Magnetwiderstand. Hall-Effekt Messungen von Kleindienst *et al.* [198] an SrIrO_3 Dünnschichten zeigen zwischen 2 K und 300 K elektronenartige Ladungsträger. Sie berechneten die Ladungsträgerkonzentration zu $n \approx 1,4 \cdot 10^{20}\text{ cm}^{-3}$, was mit dem aus ARPES-Messungen bestimmten Wert von $n \approx 4,7 \cdot 10^{20}\text{ cm}^{-3}$ gut übereinstimmt.

Die Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften von SrIrO_3 untersuchten Matsuno *et al.* [199], indem sie m Monolagen SrIrO_3 durch eine Monolage SrTiO_3 von einander getrennt haben. Für $m = \infty$, also (dickem) SrIrO_3 , fanden sie para-

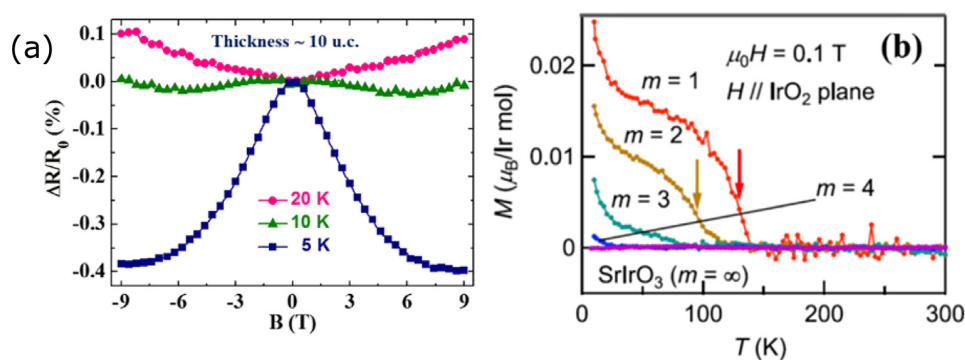


Abb. 5.4.: (a) Temperaturabhängiger Magnetwiderstand einer 10 ML dicken SrIrO_3 Schicht bei einem senkrecht zur Filmebene orientiertem Magnetfeld und (b) Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung einer $(\text{SrIrO}_3)_m/\text{SrTiO}_3$ Struktur in einem parallel zu den IrO_2 Ebenen angelegten Magnetfeld. Abbildung aus Curr. Appl Phys. **17**, A. Biswas und Y. H. Jeong, *Growth and engineering of perovskite SrIrO_3 thin films*, Copyright (2017) [192], mit Erlaubnis von Elsevier.

magnetisches Verhalten, wogegen in $m \leq 3$ ML sich eine langreichweitige magnetische Ordnung einstellt.

5.1.3. Grenzflächeneffekte

Treffen zwei Materialien an einer Grenzfläche aufeinander so wechselwirken sie über die verschiedenen Freiheitsgrade (Gitter, Ladung, Orbital und Spin) miteinander. Diese Wechselwirkung kann unter anderem durch den Spannungszustand und der Dicke der Schichten beeinflusst werden [200, 201]. Bei der Kombination von Übergangsmetalloxiden lassen sich viele neuartige Effekte realisieren. So fand man beispielsweise Supraleitung an der Grenzfläche zwischen den beiden Isolatoren LaAlO_3 und SrTiO_3 [202] oder einen ferromagnetischen Grenzflächenzustand in SrMnO_3 basierten Heterostrukturen [203, 204].

Sowohl SrRuO_3 als auch SrIrO_3 weisen eine relativ geringe Gitterfehlpassung zum verwendeten SrTiO_3 Substrat auf. Daher können beide Materialien ohne größere Gitterverzerrungen epitaktisch als Heterostrukturen auf SrTiO_3 aufgewachsen werden. Da alle drei Perowskite sowohl dieselbe Summenformel SrBO_3 mit Sr^{2+} als Valenz auf dem A -Platz besitzen, müssen die B -Platz Kationen ebenfalls dieselbe Valenz aufweisen (Ti^{4+} , Ru^{4+} und Ir^{4+}). Dadurch tritt an den

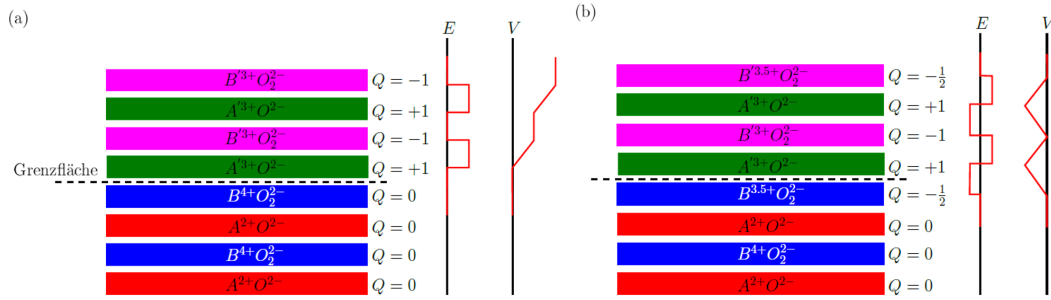


Abb. 5.5.: Darstellung der polaren Katastrophe zwischen den beiden Ionenkristallen $A^{2+}B^{4+}O_3$ und $A'^{3+}B'^{3+}O_3$, wie beispielsweise zwischen SrTiO_3 und LaAlO_3 . (a) Durch den Symmetriebruch an der Grenzfläche ergibt sich ohne Ladungstransfer für das elektrische Feld E und das elektrostatische Potential V der abgebildete Verlauf. Mit zunehmender Schichtdicke des Materials $A'^{3+}B'^{3+}O_3$ divergiert das Potential. (b) Der Transfer einer Ladung $Q = -1/2$ von der Oberfläche an die Grenzfläche führt zu einem oszillierenden Verhalten des elektrischen Feldes E um null und des Potentials V um einen endlichen Wert herum. Abbildung nach Nat. Mater. **5**, N. Nakagawa *et al.*, *Why some interfaces cannot be sharp*, Copyright (2006) [205], mit Erlaubnis von Springer Nature.

Grenzflächen kein Ladungstransfer aufgrund der in Abb. 5.5 dargestellten polaren Katastrophe, wie beispielsweise zwischen SrTiO_3 und LaAlO_3 , auf [206].

In der Heterostruktur kommt es an der Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 bzw. zwischen SrRuO_3 und SrTiO_3 zu einem Bruch der Inversionssymmetrie, was eine Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung an dieser hervorruft, durch die mögliche Néel-Skymionen stabilisiert werden.

Experimentell haben verschiedene Gruppen Hall-Effekt Messungen an solchen $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Schichtsystemen durchgeführt. In diesen identifizierten sie das Auftreten eines zusätzlichen Signal $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ als topologischen Hall-Effekts ρ_{THE} [17, 207–214], was auf die Anwesenheit von Skymionen hinweisen könnte.

Ein alternativer Ansatz von Groenendijk *et al.* identifiziert $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ nicht mit einem topologischen Hall-Effekt. Stattdessen erklären sie den Verlauf des anomalen Hall-Effekts im SrRuO_3 aufgrund der Bandstruktur, und der damit verbundenen Berry-Krümmung im Impulsraum, durch zwei unabhängige, spinpolarisierte Leitungschanäle [2, 215]. In diesem Modell können die beiden Leitungschanäle unterschiedliche Vorzeichen haben, wodurch sich in der linearen Superposition der beiden Kanäle ein ähnliches Signal wie $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ im gemessenen Hall-Effekt erzeugt. Dieses sogenannte 2-Kanal Modell zur Beschreibung des anomalen Hall-Effekts kommt ohne die Bildung von Skymionen aus. Neben der Erklärung mit dem topologischen Hall-Effekt wird dieser Erklärungsansatz ebenfalls von anderen Gruppen zur Beschreibung ihrer Daten genutzt [215–219].

5.2. Vorarbeiten an $(001)_{\text{pc}}$ orientierten dicken Bilagen

Um Bilagen und Heterostrukturen monolagengenau zu wachsen, wurden zunächst die Wachstumsparameter für die Ausgangssysteme SrRuO_3 und SrIrO_3 separat voneinander eingestellt, um ein phasenreines und glattes Wachstum der Einzelsysteme zu gewährleisten. Anschließend konnte die benötigte Lösungsmenge für das Wachstum einer Monolage mittels Schichtdickenserien bestimmt werden.

Ermittlung der Syntheseparameter für SrRuO_3

Ausgehend von früheren mit der MAD-Technik hergestellten SrRuO_3 Dünnschichten [100, 220] wurde mit einem Präkursorverhältnis von 1 zu 1,25 zwischen Sr und Ru gestartet. Für die Bestimmung der optimalen Wachstumsparameter wurde zunächst das Präkursorverhältnis Sr:Ru variiert. Dabei wurden die Ru Konzentration $c_{\text{Ru}} = 0,02 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$ in der Lösung, die Depositionstemperatur T_{Dep} , die Depositionsrate v_{Dep} und die Depositionsmenge V_{Dep} konstant gehalten, um mögliche Änderungen im Filmwachstum auf das Präkursorverhältnis zurück führen zu können. Das optimale Präkursorverhältnis wurde durch die Analyse von Röntgendiffraktogrammen auf Fremdphasen-Reflexe bestimmt.

Anschließend wurden mit dem optimalen Präkursorverhältnis bei konstanter Temperatur die Depositionsrate v_{Dep} und bei konstanter Rate die Depositionstemperatur T_{Dep} variiert, um die optimalen Bedingungen für das Wachstum von glatten Oberflächen zu realisieren. Oberflächenaufnahmen mittels Rasterkraftmikroskopie sowie Röntgenreflektometrie Messungen wurden verwendet, um die Proben auf ihre Oberflächenrauigkeit zu überprüfen. Als optimale Wachstumsparameter für SrRuO_3 konnte so ein Präkursorverhältnis Sr:Ru von 1:1,22 mit der Ru Konzentration $c_{\text{Ru}} = 0,02 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$ und einer Depositionsrate $v_{\text{Dep}} = 2,6 \frac{\mu\text{l}}{\text{s}}$ bei einer Depositionstemperatur $T_{\text{Dep}} \approx 800^\circ\text{C}$ bestimmt werden. Abbildung 5.6(a) zeigt für einen 31(3) nm dicken, mit den optimalen Wachstumsparametern auf (001) orientiertem SrTiO_3 hergestellten SrRuO_3 Film das aufgenommene Röntgendiffraktogramm. Neben der pseudo kubischen $(001)_{\text{pc}}$ Phase des SrRuO_3 können keine Fremdphasen beobachtet werden. Dies lässt auf ein Wachstum mit out-of-plane Epitaxie schließen. Die aus der Bragg-Bedingung bestimmten out-of-plane Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}} = 3,943(7) \text{ \AA}$ ist im Vergleich zum Literaturwert $d(001)_{\text{Lit}} = 3,923 \text{ \AA}$ etwas vergrößert. Der Grund hierfür liegt an der biaxialen

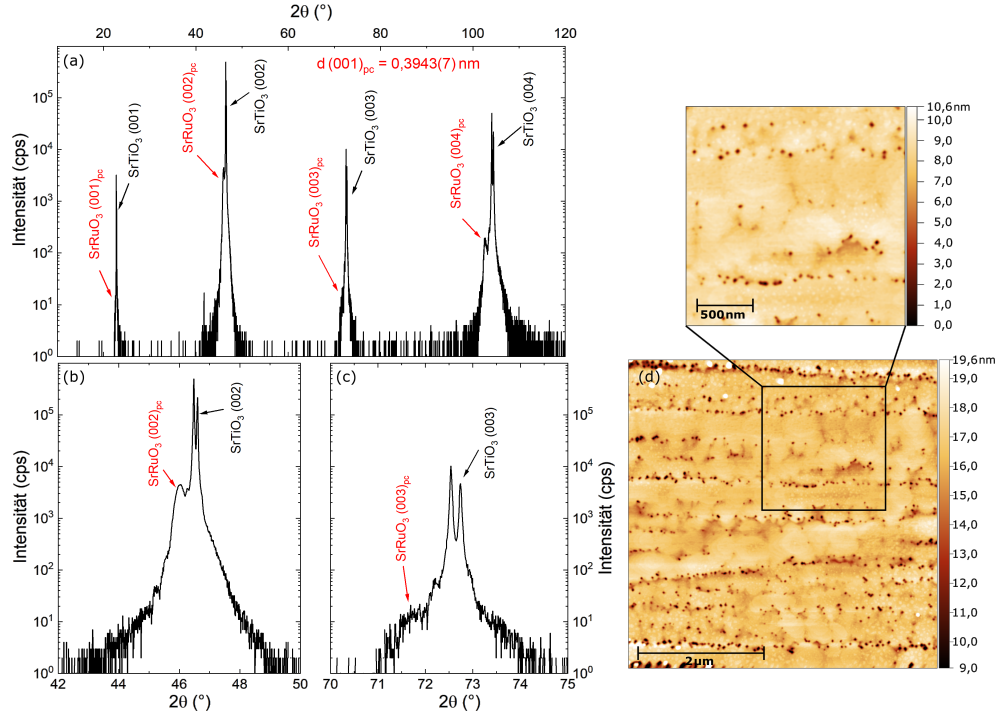


Abb. 5.6.: (a) XRD Messung eines mit optimalen Wachstumsparametern hergestellten SrRuO₃ auf (001) SrTiO₃. Eine detailliertere Darstellung des (002) Reflex ist in (b) und des (003) Reflex in (c) zu sehen. Die Messung wurde mit dem *X'Pert* Diffraktometer durchgeführt. (d) AFM Aufnahme des SrRuO₃ Films. Die Oberflächenrauigkeit des $d = 31(3)$ nm dicken Films ergibt sich im betrachteten $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$ großen Bereich zu $R_q \approx 1,23(4)$ nm. Der markierte $2\text{ }\mu\text{m} \times 2\text{ }\mu\text{m}$ Bereich zeigt eine Rauigkeit von $R_q \approx 0,76(7)$ nm.

Druckspannung ($\sim 0,46\%$ Gitterfehlpassung), die durch das SrTiO₃ Substrat induziert wird. Die Oberfläche des Films zeigt eine Oberflächenrauigkeit, auch als RMS⁴-Rauigkeit bezeichnet, von $R_q \approx 1,23(4)$ nm auf einem $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$ großen Bereich. Betrachtet man sich einen kleineren Ausschnitt mit einer Größe von $2\text{ }\mu\text{m} \times 2\text{ }\mu\text{m}$ reduziert sich die Rauigkeit auf $R_q \approx 0,76(7)$ nm (siehe Abbildung 5.6(d)).

Mit den optimalen Parametern konnte daraufhin durch eine Schichtdickenserie die benötigte Menge an Präkursorlösung für das Wachstum einer Monolage an SrRuO₃ ermittelt werden. In den Röntgenreflektometrie Messungen (XRR) in Abbildung 5.7(a) lassen sich deutlich Kiessig fringes beobachten, was auf ein homogenes Wachstum schließen lässt. Die Röntgenreflektometrie konnte in guter Übereinstimmung mittels **ReMagX** [136] simuliert und so die Schichtdicken d be-

⁴engl. root-mean-square

stimmt und ins Verhältnis zum deponierten Lösungsvolumen V_{Dep} gesetzt werden (siehe dazu das Inset von Abb. 5.7(a)). Zwischen der SrRuO_3 Schichtdicke und dem deponierten Volumen ist ein deutlicher linearer Zusammenhang zu erkennen. In Tabelle 5.1 ist dieser Zusammenhang aufgeführt.

Für die Schichtdickenserie sind in Abb. 5.7(b) außerdem der zeitliche Verlauf des Imaginärteils $\text{Im}(\delta\rho/\rho_0)$ dargestellt. Alle Schichten weisen eine ähnliche Krümmung auf, was nach Abschnitt 3.2.2 auf ähnliche optische Konstanten hinweist. Zudem kann für alle Schichten während der zeitliche Dauer $t_{\text{Ende}} - t_{\text{Start}}$ des gesamten Wachstums ein linearer Anstieg beobachtet werden. Dieser Anstieg ist proportional zur Schichtdicke d des gewachsenen Films. Dadurch kann die Dicke von ultradünnen Filmen qualitativ über die zeitliche Dauer $t_{\text{Ende}} - t_{\text{Start}}$ kontrolliert werden, auch wenn wegen der geringen Schichtdicke die Kiessig fringes in der Röntgenreflektometrie nicht deutlich zu erkennen sind.

Abb. 5.7(c) zeigt die Δ - Ψ Trajektorien der Schichtdickenserie. Diese zeigen alle einen ähnlichen Kurvenverlauf, was nach Abschnitt 3.2.2 auf ähnliche optische Konstanten hinweist. Im Gegensatz zu der Krümmung $\text{Im}(K)$ in $\text{Im}(\delta\rho/\rho_0)$ (siehe Gl.(3.4)) werden in den dargestellten Trajektorien sowohl der Real- als auch der Imaginärteil der optischen Konstanten berücksichtigt. Geringfügige Abweichungen zwischen den einzelnen Kurven können durch unterschiedliche Oberflächenrauigkeiten der verwendeten Substrate hervorgerufen werden. Ebenfalls, wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, zeigen dickere Proben eine längere Trajektorie.

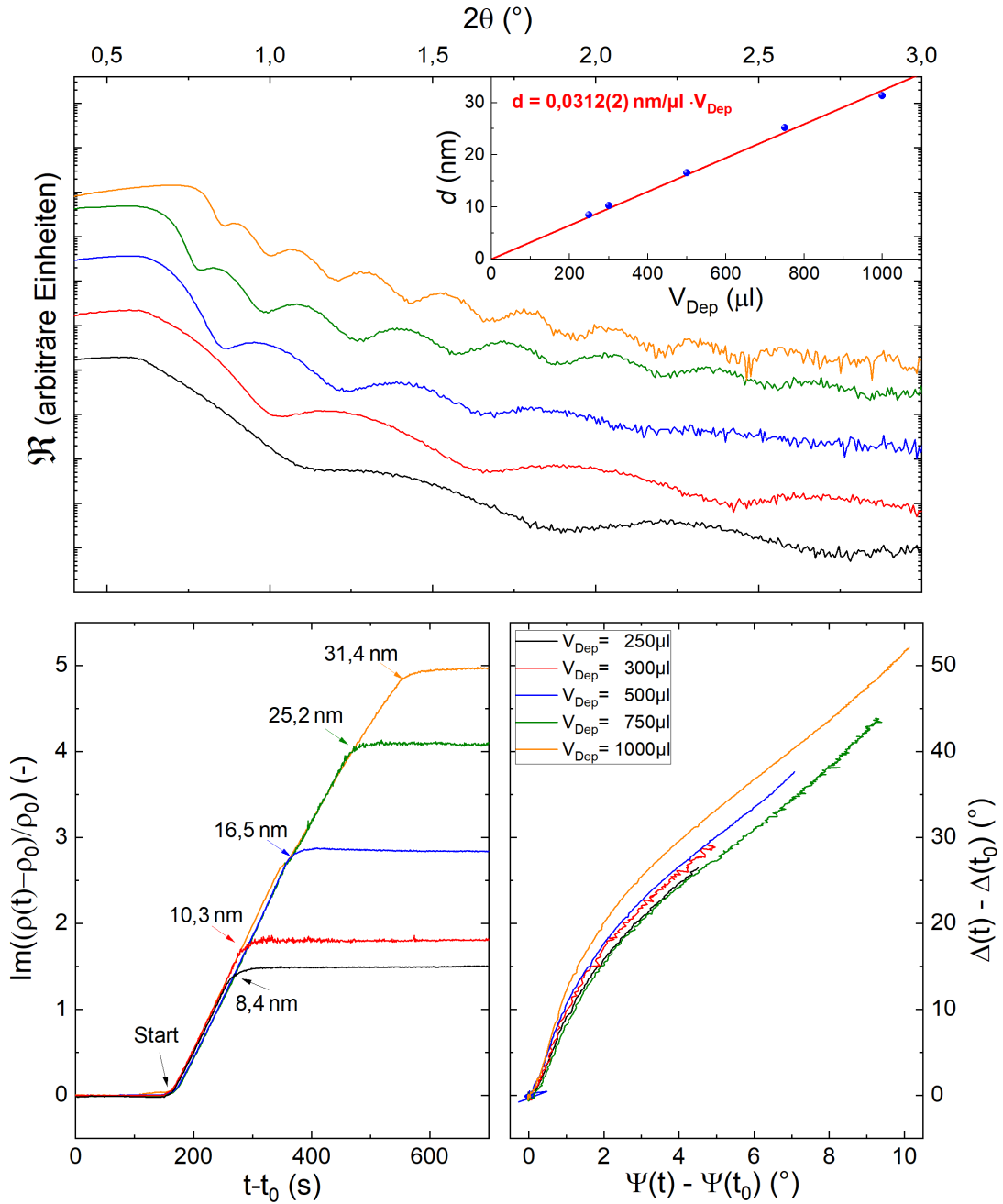


Abb. 5.7.: (a) XRR Messungen der Schichtdickenserie von SrRuO_3 auf (001) SrTiO_3 . Im *Inset* ist die ermittelte Schichtdicke d in Abhängigkeit des deponierten Lösungsvolumen V_{Dep} aufgetragen. Diese folgt einem linearen Zusammenhang.
 (b) Zeitlicher Verlauf des Imaginärteils $\text{Im}(\delta\rho/\rho_0)$ der Schichtdickenserie. Die Pfeile markieren den Start als auch das Ende des jeweiligen Schichtwachstums.
 (c) Δ - Ψ Trajektorien der Schichtdickenserie. Für eine bessere Vergleichbarkeit der Kurven wurden die Differenzen $\Delta(t) - \Delta(t_0)$ und $\Psi(t) - \Psi(t_0)$ mit den ellipsometrischen Winkeln $\Delta(t_0)$ und $\Psi(t_0)$ des verwendeten Substrats aufgetragen.

Bestimmung der Syntheseparameter für SrIrO₃

Für SrIrO₃ erfolgte die Bestimmung der Syntheseparameter analog zu dem Vorgehen von SrRuO₃. Als Ausgangspunkt wurde ein Präkursorverhältnis von 1:1,25 zwischen Sr und Ir mit einer Ir Konzentration von $c_{\text{Ir}} = 0,02 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$ in der Lösung gewählt. Die Depositionstemperatur T_{Dep} wurde fest auf den optimalen Wert für das Wachstum von SrRuO₃ eingestellt, da im späteren Verlauf Bilagen und Heterostrukturen aus SrIrO₃ und SrRuO₃ hergestellt werden, und daher beide Materialien bei derselben Temperatur optimal wachsen müssen. Als optimale Wachstumsparameter ergaben sich für das Wachstum von SrIrO₃ das Präkursorverhältnis von 1:1,25 mit einer Depositionsrate von $v_{\text{Dep}} = 2,1 \frac{\mu\text{l}}{\text{s}}$ bei der Depositionstemperatur $T_{\text{Dep}} \approx 800^\circ\text{C}$.

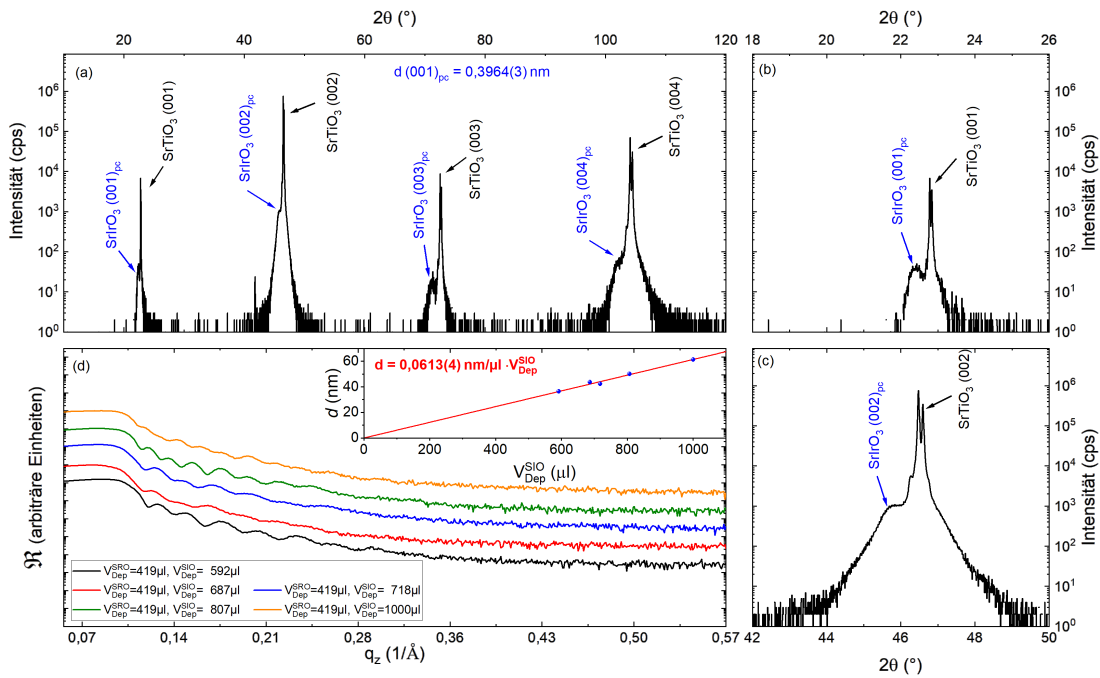


Abb. 5.8.: (a) XRD Messung eines mit optimalen Wachstumsparametern hergestellten SrIrO₃ Films auf (001) SrTiO₃. (b) zeigt eine nähere Betrachtung des (001) Reflex und (b) den (002) Reflex. Die Messung wurde mit dem X'Pert Diffraktometer durchgeführt.

(d) XRR Messungen der Schichtdickenserie von dicken Bilagen aus SrIrO₃ (SIO) und SrRuO₃ (SRO) auf (001) SrTiO₃. Alle Bilagen der Schichtdickenserie haben dieselbe Schichtdicke der SrRuO₃ Lage. Im *Inset* ist die ermittelte Schichtdicke d des Iridats in Abhängigkeit des deponierten Lösungsvolumen $V_{\text{Dep}}^{\text{SIO}}$ aufgetragen und folgt einem linearen Zusammenhang.

Tab. 5.1.: Ermittelter Zusammenhang zwischen Depositionsvolumen V_{Dep} und Schichtdicke d .

Material	d/V_{Dep} Verhältnis (nm/ μl)
SrRuO ₃	0,0312(2)
SrIrO ₃	0,0613(4)

In Abbildung 5.8(a)-(c) ist das Röntgendiffraktogramm eines mit diesen Parametern hergestellten SrIrO₃ Films auf (001) SrTiO₃ dargestellt. Im Diffraktogramm kann außer der gewünschten pseudo kubischen (001)_{pc} Orientierung des SrIrO₃ keine Fremdphase beobachtet werden, was auf ein epitaktisches Wachstum in out-of-plane Richtung hinweist. Die Gitterkonstante in out-of-plane Richtung ergibt sich zu $d(001)_{\text{pc}} = 3,964(3) \text{ \AA}$ und ist damit im Vergleich zum Literaturwert $d(001)_{\text{Lit}} = 3,948 \text{ \AA}$ vergrößert. Wie zuvor bei den SrRuO₃ Filmen liegt diese Vergrößerung an der biaxialen in-plane Druckspannung durch das Substrat.

Anschließend wurde zur Bestimmung der benötigten Lösungsmenge für das Wachstum einer Monolage SrIrO₃ eine Schichtdickenserie von dicken Bilagen aus SrRuO₃ und SrIrO₃ durchgeführt. Die Schichtdicke der SrRuO₃ Lage wurde dabei konstant gehalten und die SrIrO₃ Lage variiert. Abbildung 5.8(d) zeigt die Röntgenreflektometrie Messungen der Schichtdickenserie. Die mittels ReMagX bestimmten Schichtdicken der Iridatschicht sind im Inset von 5.8(d) über der deponierten Lösungsmenge aufgetragen. Das aus dem linearen Zusammenhang ermittelte Ver-

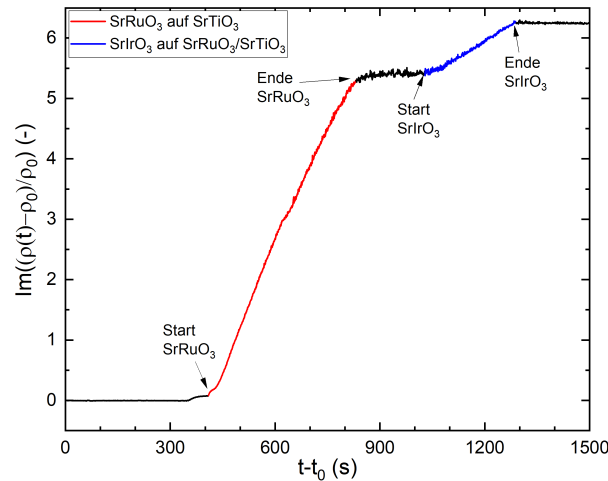


Abb. 5.9.: Ellipsometriesignal einer dicken SrRuO₃/SrIrO₃ Bilage. Das Wachstum von SrRuO₃ ist in rot und das von SrIrO₃ in blau dargestellt. Deutlich lässt sich eine unterschiedliche Krümmung bei dem Wachstum der beiden Systeme erkennen.

hältnis d/V_{Dep} zwischen Schichtdicke und deponiertem Lösungsmittelvolumen ist in Tabelle 5.1 aufgeführt.

Abbildung 5.9 zeigt für eine dicke $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Bilage das aufgenommene Ellipsometriesignal. Während des Wachstums der SrRuO_3 und der SrIrO_3 Schicht zeigen sich unterschiedliche Krümmungen in $\text{Im}\left(\frac{\delta\rho}{\rho_0}\right)$. Dies ermöglicht die Unterscheidung zwischen dem Wachstum der SrRuO_3 und den SrIrO_3 Lagen in der Heterostruktur.

5.3. Strukturelle Charakterisierung

Mit den optimal eingestellten Parametern für die Einzelsysteme konnten Heterostrukturen der Form $[(\text{SrRuO}_3)_m/(\text{SrIrO}_3)_n]_k$, also k Wiederholungen einer Bilage aus m Monolagen SrRuO_3 und n Monolagen SrIrO_3 , auf (001) SrTiO_3 hergestellt werden. Für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur ist in Abbildung 5.10(a) exemplarisch das in der Bragg-Brentano aufgenommene Röntgendiffraktogramm dargestellt. Im Röntgenspektrum der Heterostruktur zeigen sich nur Reflexe der (001)_{pc} Orientierungen von SrRuO_3 und SrIrO_3 . Mit der Bragg-Bedingung konnte die out-of-plane Gitterkonstante der Heterostruktur zu $d(001)_{\text{pc}} = 3,950(4) \text{ \AA}$ berechnet werden, was auf ein verspanntes Wachstum hindeutet.

Mit der Aufnahme einer reziproken Raumkarte um den (103) Reflex (siehe Abbildung 5.10(c)) konnte das vollverspannte Wachstum bestätigt werden. Dafür wurde zunächst in der reziproken Raumkarte entlang $q_x = 1,609 \text{ \AA}^{-1}$ ein Schnitt durch den Reflex des Substrats und des Films gelegt. Dies ist in Abbildung 5.11(a) mit der schwarzen Linie dargestellt. Anschließend konnte mittels einem Gauss-Fit der q_z Wert des (103) Filmreflex bestimmt werden (Abb. 5.11(b)). Aus diesem ergibt sich über $d(001)_{\text{pc}} = 2\pi/q_z$ die Gitterkonstante zu $d(001)_{\text{pc}} = 3,945(1) \text{ \AA}$ und stimmt damit mit der berechneten Gitterkonstanten aus der klassischen Röntgenbeugung gut überein. Durch einen Schnitt in der reziproken Raumkarte entlang $q_z = 4,778 \text{ \AA}^{-1}$ (rote Linie in Abb. 5.11(a)) lässt sich q_x Wert des Filmreflexes mittels Gauss-Fit bestimmen (siehe Abb. 5.11(c)). Die zugehörige in-plane Gitterkonstante ergibt über $d(100)_{\text{pc}} = 2\pi/q_x$ zu $d(100)_{\text{pc}} = 3,901(3) \text{ \AA}$. Dies zeigt das vollverspannte Wachstum der Heterostruktur auf dem (001) orientierten SrTiO_3 Substrat an. Aus der ermittelten Halbwertsbreite (FWHM) für den in-plane Reflex (q_x) und dem out-of-plane Reflex (q_z) lassen sich die Variation der Gitterkonstanten $d(100)_{\text{pc}}$ und $d(001)_{\text{pc}}$ bestimmen.

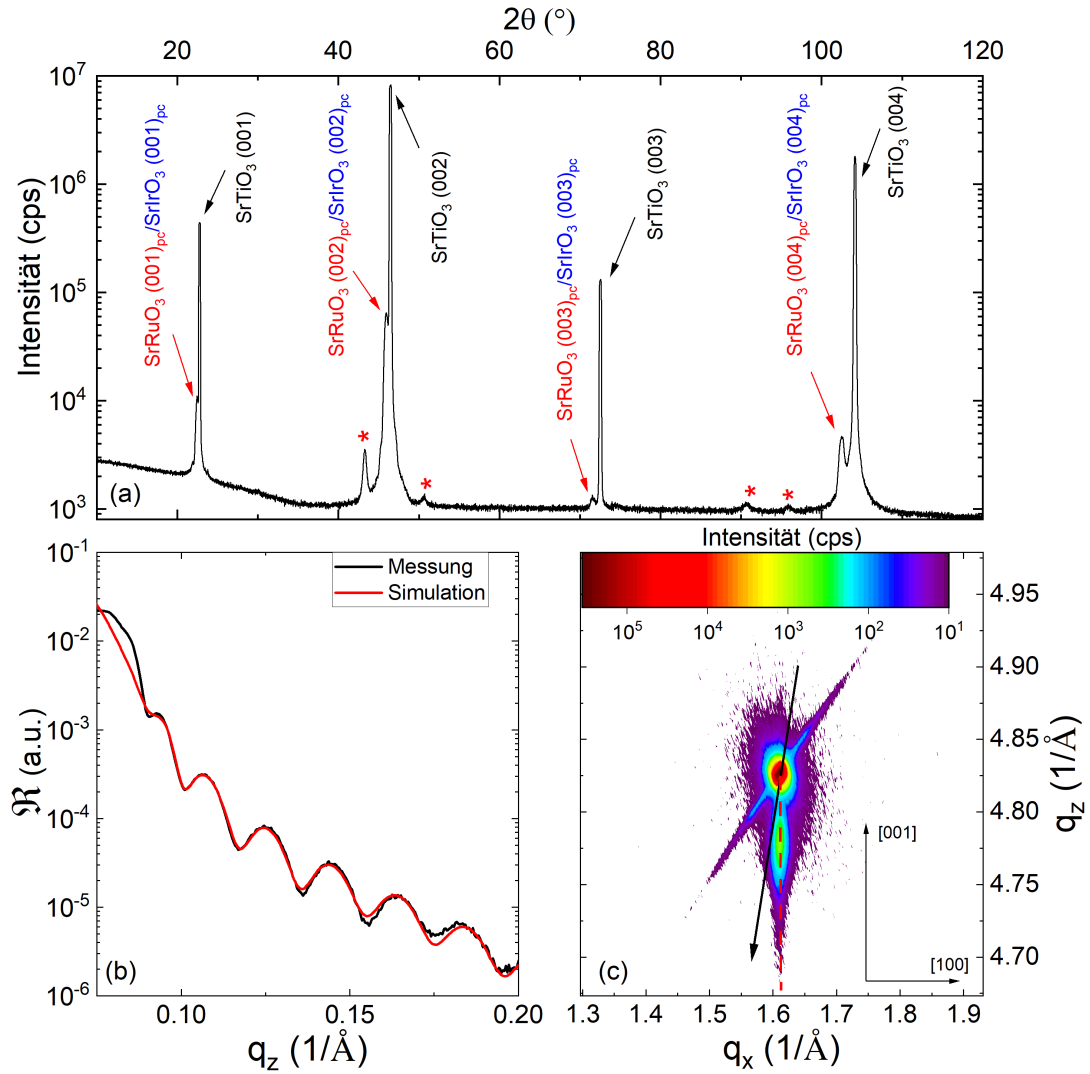


Abb. 5.10.: (a) Röntgendiffraktogramm einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur. Schwarze Pfeile markieren die Position der (001) SrTiO_3 Reflexe und rote Pfeile Reflexe von $(001)_{\text{pc}}$ SrRuO_3 bzw. SrIrO_3 . Sterne markieren die Positionen der Überstrukturereflexe.

(b) XRR Messung (schwarz) derselben Heterostruktur zusammen mit dem mittels **ReMagX** [136] simulierten Verlauf (rot).

(c) Die reziproke Raumkarte um den pseudo kubischen (103) Reflex bestätigt den vollverspannten Zustand. Der schwarze Pfeil zeigt entlang der Ursprungsgeraden. Die rot gestrichelte Linie gibt die truncation rod an.

Alle Messungen wurden mit dem *Empyrean* Diffraktometer und einem Hybridmonochromator als Primäroptik aufgenommen. Abbildung (b) und (c) nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

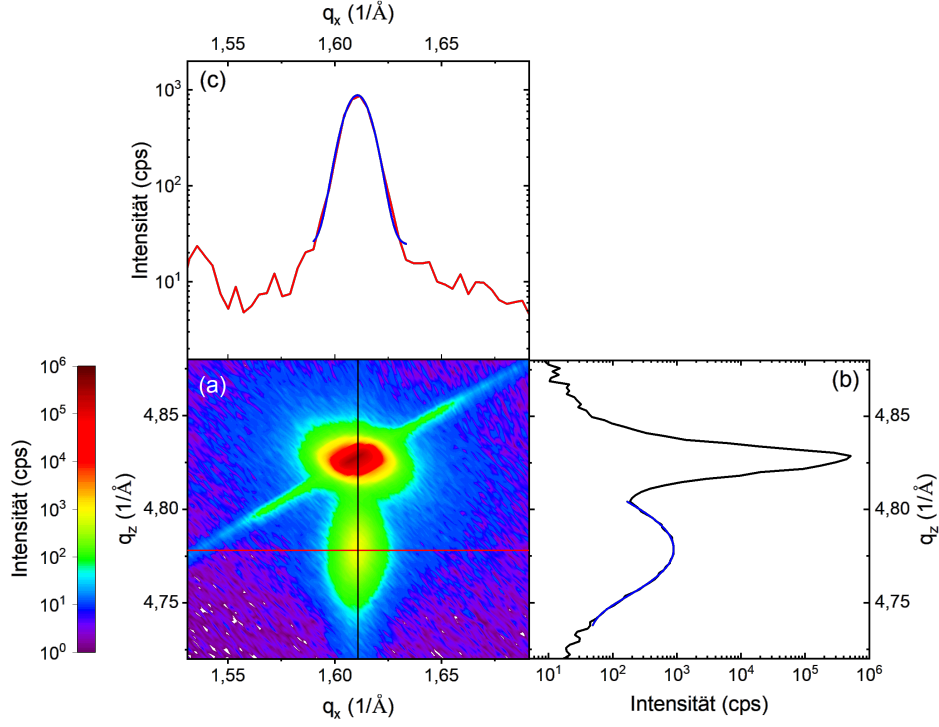


Abb. 5.11.: (a) reziproke Raumkarte um den pseudo kubischen (103) Reflex einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur. Die schwarze Linie markiert einen Schnitt entlang $q_x = 1,609 \text{ \AA}^{-1}$ und die rote Linie einen Schnitt entlang $q_z = 4,778 \text{ \AA}^{-1}$ durch die reziproke Raumkarte.
(b) Das Linienprofil entlang $q_x = 1,609 \text{ \AA}^{-1}$ zeigt den (103) Reflex des Substrats und der Heterostruktur. Aus dem Reflex des Peaks (blau) ergibt sich die pseudo kubische out-of-plane Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}} = 3,945(1) \text{ \AA}$ berechnen.
(c) Aus dem Linienprofil entlang $q_z = 4,778 \text{ \AA}^{-1}$ lässt sich die pseudo kubische in-plane Gitterkonstante $a(100)_{\text{pc}} = 3,901(3) \text{ \AA}$ aus dem Reflex der Heterostruktur (blau) berechnen.

Die so erhaltenen Werte sind in Tabelle 5.2 aufgeführt. Die Variation der Gitterkonstante lässt sich über $(d_{\text{max}} - d_{\text{min}})/d(001)_{\text{pc}}$ bestimmen. Sowohl für die in-plane als auch für die out-of-plane Orientierung ist die Variation kleiner als 1%.

Aus der in Abbildung 5.10(b) dargestellten Röntgenreflektometrie kann mittels ReMagX [136] neben der Gesamtschichtdicke der Heterostruktur auch die Dicken der Einzellagen simuliert werden. Für die gesamte Heterostruktur ergibt die Simulation eine Schichtdicke von 28,3 nm, wobei sich für 5 Monolagen SrRuO₃ eine Schichtdicke von 20,2(7) Å und für 2 Monolagen SrIrO₃ eine Dicke von 8,1(2) Å aus der Simulation ergibt.

Tab. 5.2.: Ermittelte Gitterkonstanten aus der reziproken Raumkarte des (103) Reflexes. Die out-of-plane Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}}$ ist oben und die in-plane Gitterkonstante $a(100)_{\text{pc}}$ ist unten aufgeführt.

q_z (\AA^{-1})	FWHM (\AA^{-1})	$d(001)_{\text{pc}}$ (\AA)	d_{min} (\AA)	d_{max} (\AA)
4,77878(9)	0,0306(4)	3,945(1)	3,957(2)	3,932(4)
q_x (\AA^{-1})	FWHM (\AA^{-1})	$a(100)_{\text{pc}}$ (\AA)	a_{min} (\AA)	a_{max} (\AA)
1,61059(6)	0,0141(2)	3,901(3)	3,918(5)	3,884(2)

In dem aufgenommen Ellipsometriesignal lässt sich deutlich das Wachstum der einzelnen Schichten anhand der unterschiedlichen Krümmungen im Signalverlauf erkennen. Abbildung 5.12(a) zeigt das Wachstum einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur und einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage. Wie in Kapitel 3.2.2 beschrieben ist die Schichtdicke der jeweiligen Lage proportional zur zeitlichen Dauer $t_{\text{Ende}} - t_{\text{Start}}$ des gemessenen Ellipsometriesignals. Die Krümmung der Kurve wird dabei durch die optischen Konstanten bestimmt. Vergleicht man in der Heterostruktur das Wachstum der einzelnen SrRuO_3 Lagen miteinander (rote Linien), erkennt man für alle Lagen im Messsignal eine ähnliche Krümmung (siehe Abb. 5.12(b)) und Dauer $t_{\text{Ende}} - t_{\text{Start}}$. Dies lässt auf ein ähnliches Wachstum der SrRuO_3 Lagen schließen. Für die in blau gekennzeichneten SrIrO_3 Lagen lässt sich dasselbe beobachten. Beim Übergang zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 tritt eine deutliche Änderung der Krümmung auf, wodurch das Wachstum der beiden Perowskite unterschieden werden kann. Die letzte SrRuO_3 und die letzte SrIrO_3 Schicht weist einen deutlich kleineren Wert $\text{Im}(K)$ auf. Der Grund dafür liegt vermutlich daran, dass beim Wachstum dieser Lagen die Näherung ultradünner Filme nicht länger angewandt werden kann.

Tab. 5.3.: Mit **ReMagX** [136] simulierte Schichtdicken von SrRuO_3 und SrIrO_3 in einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur für die Gesamtschicht d und der Dicke t pro Monolage.

Filmstruktur	Material	d (\AA)	Anzahl Monolagen (ML)	t ($\text{\AA}/\text{ML}$)
$(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$	SrRuO_3	20,7(1)	5	4,1(4)
	SrIrO_3	8,5(1)	2	4,2(5)
$[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$	SrRuO_3	20,2(7)	5	4,0(5)
	SrIrO_3	8,1(2)	2	4,0(6)

Abbildung 5.13 zeigt die gemessene Röntgenreflektometrie der Bilage und der Heterostruktur. Aus der Simulation mittels **ReMagX** konnten die in Tabelle 5.3 aufgeführten Schichtdicken der Einzellagen bestimmt werden. Am Beispiel der Bilage ist auch die Präzision der Ellipsometrie als Schichtdickenkontrolle im Bereich ultra-dünner Filme erkenntlich. In der Reflektometrie sind aufgrund der geringen Schichtdicke der Bilage ($\sim 2,9(2)$ nm) stark verbreiterte Kiessig fringes zu beobachten, wodurch die Simulation sowohl der Gesamtschichtdicke als auch der Einzellagen erschwert wird. Im Ellipsometriesignal lässt sich auch das Signal einer zwei Monolagen dicken Schicht deutlich erkennen.

Die hohe strukturelle Qualität lässt sich auch in der HAADF HR-STEM Aufnahme (Abb. 5.14(a)) einer ~ 28 nm dicken Heterostruktur erkennen. In der lokalen Fouriertransformation im Bereich der Heterostruktur (Abb. 5.14(b)) erkennt man die pseudo kubische Kristallstruktur. Die Untersuchung der Oberfläche mittels Rasterkraftmikroskopie (Abb. 5.14(c)) zeigt mit der geringen Oberflächenrau-

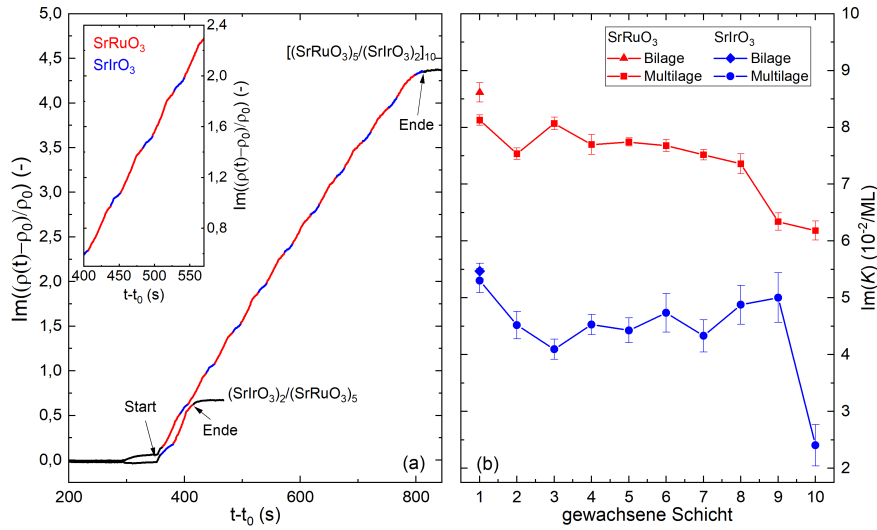


Abb. 5.12.: Vergleich zwischen einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage mit Gesamtdicke $d = 2,7(5)$ nm und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur der Dicke $d = 28,5(1)$ nm.

- (a) Zeitlicher Verlauf des Imaginärteils $Im(\rho)$ des während des Wachstums aufgenommenen Ellipsometriesignals. In rot ist das Wachstum von SrRuO_3 , in blau das Wachstum von SrIrO_3 und in schwarz das Signal vor und nach dem Filmwachstum dargestellt. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.
- (b) Verlauf der Krümmung $Im(K)$ für die einzelnen SrRuO_3 (rot) und SrIrO_3 (blau) Schichten.

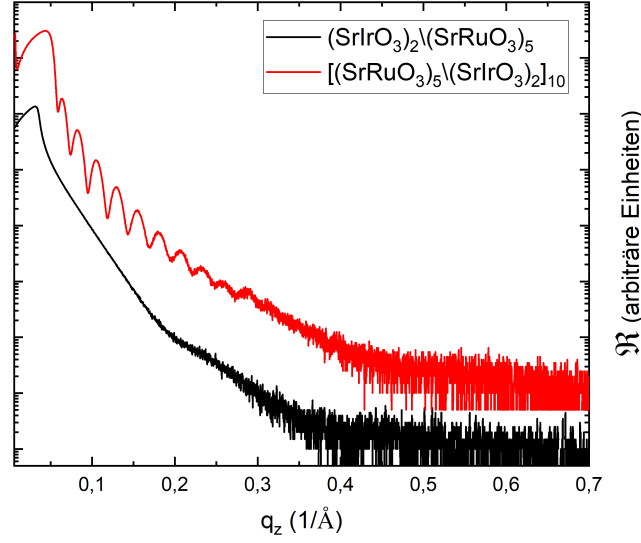


Abb. 5.13.: Vergleich der XRR Messungen zwischen einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage mit Gesamtdicke $d = 2,7(5) \text{ nm}$ (schwarz) und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur der Dicke $d = 28,5(1) \text{ nm}$ (rot).

igkeit von $R_q \approx 1,09(8) \text{ nm}$ auf einem $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ großen Bereich das Wachstum der Überstruktur. Betrachtet man einen beliebigen Bereich der $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ (siehe markierten Bereich in Abb. 5.14(c)) ergibt sich eine Oberflächenrauigkeit von $R_q \approx 0,87(8) \text{ nm}$. Dies zeigt das glatte Wachstum der Überstruktur an.

In Abbildung 5.14(d) ist für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur die HAADF HR-STEM Aufnahme parallel zur Grenzfläche zum SrTiO_3 Substrat dargestellt, in der die Kristallstruktur entlang der in-plane Orientierungen $[100]$ und $[010]$ zu sehen ist. Deutlich lässt sich ein identisches Wachstum entlang beider Richtungen beobachten, und zeigt sich ebenfalls in der lokalen Fouriertransformation (Abb. 5.14(e)).

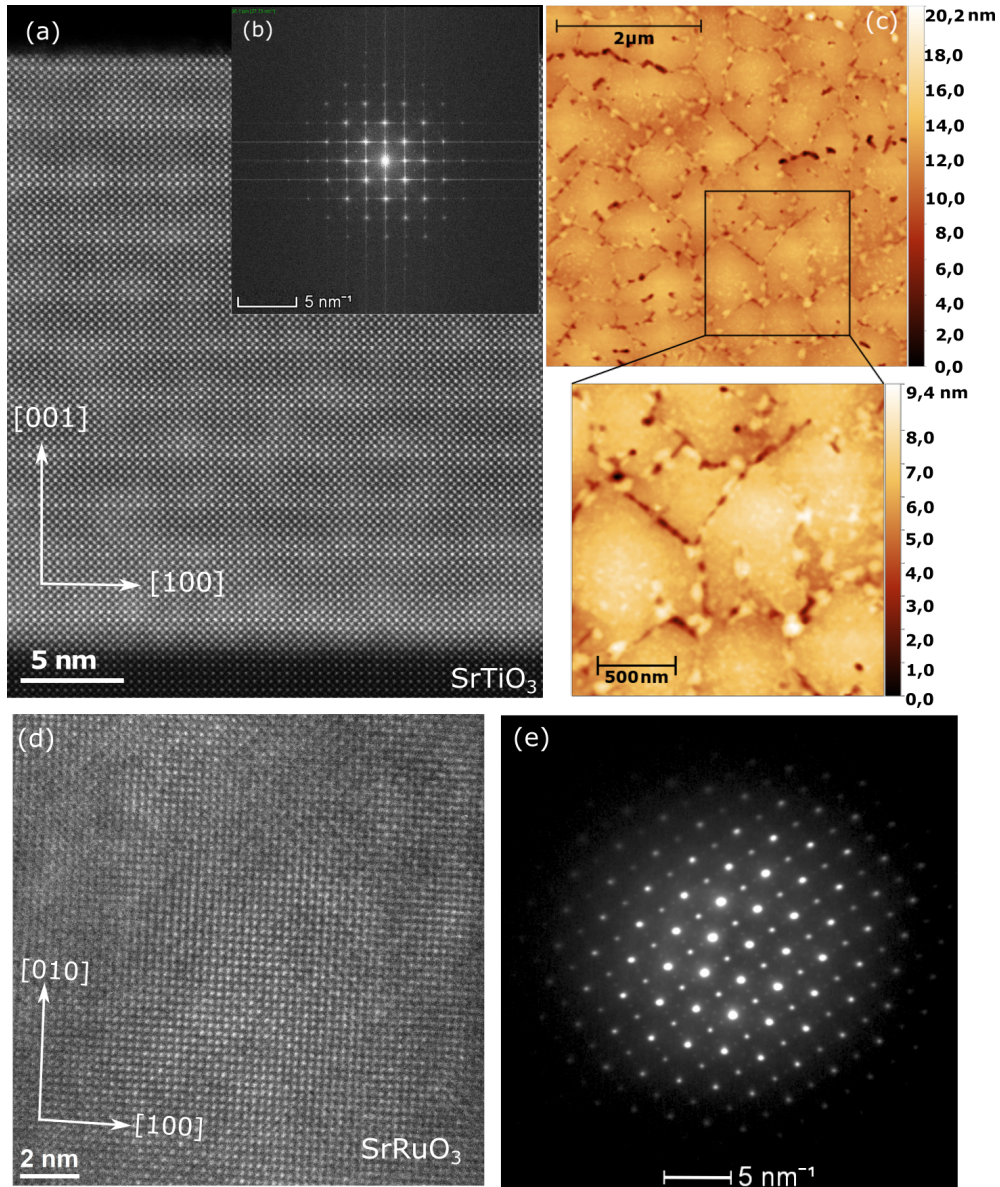


Abb. 5.14.: (a) HAADF HR-STEM Aufnahme einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur mit ~ 28 nm Schichtdicke. (b) Fouriertransformation der HAADF HR-STEM Aufnahme zeigt die pseudo kubische Kristallstruktur der Heterostruktur. (c) Rasterkraftmikroskopie Aufnahme der Probenoberfläche. Die gute Probenqualität zeigt sich anhand der geringen Oberflächenrauigkeit von $R_q \approx 1,09(8)$ nm auf eine $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ großen Fläche. Der markierte $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ große Bereich weist eine Rauigkeit von $R_q \approx 0,87(8)$ nm auf. (d) HAADF HR-STEM Aufnahme einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur entlang der Grenzfläche zwischen SrTiO_3 und SrRuO_3 . (e) Fouriertransformation der in-plane HAADF HR-STEM Aufnahme aus (d). Abbildung (a)-(c) nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

5.4. Magnetische Eigenschaften

In Abbildung 5.15 ist für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur für Magnetfeldorientierungen senkrecht (out-of-plane) und parallel (in-plane) zur Filmebene die feldabhängige (Abb. 5.15(a)) und die temperaturabhängige Magnetisierung (Abb. 5.15(b)) exemplarisch dargestellt.

Nach Abzug des magnetischen Untergrundsignals, wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, lässt sich für Magnetfelder senkrecht zur Probenoberfläche eine doppelt so große Magnetisierung sowohl in der Messung der feldabhängigen als auch in der temperaturabhängigen Magnetisierung beobachten. Sowohl bei out-of-plane ($\vec{H} \parallel [001]$) als auch bei in-plane orientierten Feldern ($\vec{H} \parallel [100]$) eine magnetische Hysterese beobachtbar ist, weist dies auf eine Drehung der leichten magnetischen Achse um den Winkel α_s aus der Probennormalen heraus. Dabei zeigt die leichte Achse stärker in out-of-plane Richtung, d.h. $\alpha_s < 45^\circ$, da bei out-of-plane Orientierung des Magnetfelds die Magnetisierung der Probe schneller gesättigt wird.

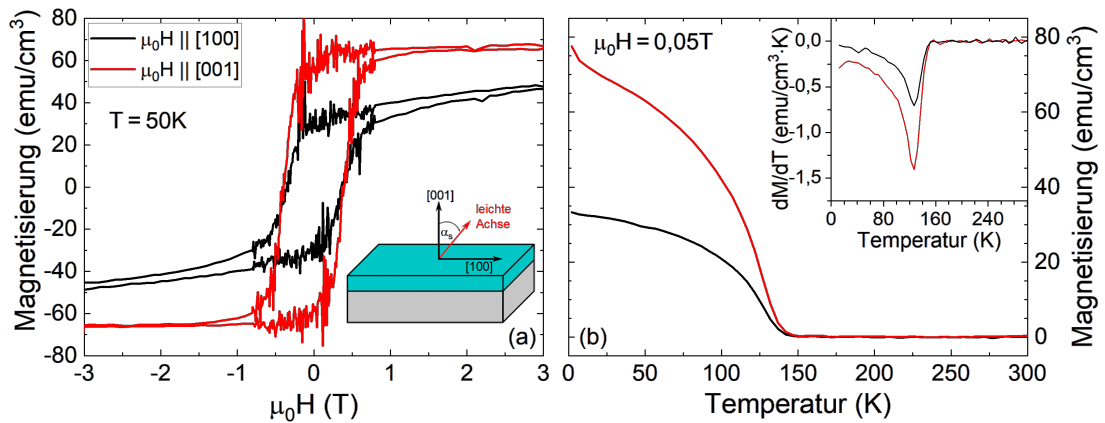


Abb. 5.15.: Vergleich der magnetischen Eigenschaften einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur für Orientierungen des externen Magnetfelds parallel (schwarz) und senkrecht (rot) zur Filmebene: (a) feldabhängige Magnetisierung $M(H)$ bei $T = 50$ K und (b) temperaturabhängige Magnetisierung $M(T)$ bei $\mu_0 H = 0,05$ T. In der im *Inset* dargestellten Ableitung dM/dT lässt sich nur eine Ordnungstemperatur T_C in der Heterostruktur beobachten. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

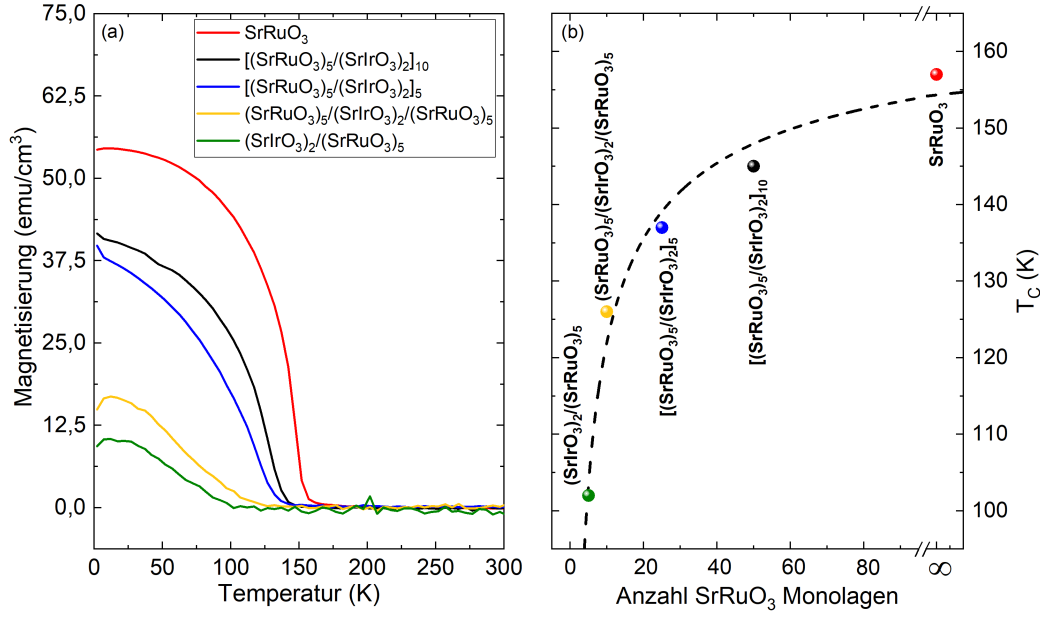


Abb. 5.16.: (a) Temperaturabhängige Magnetisierung bei in-plane orientiertem Magnetfeld $\mu_0 H = 0,05$ T von einer Bilage $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$, einer Trilage $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$, sowie von zwei Heterostrukturen $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ mit $k = 5$ und $k = 10$ im Vergleich zu einem reinen SrRuO_3 Film. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.
 (b) Abhängigkeit der Ordnungstemperatur von der Grenzflächenanzahl zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 . (Die schwarz gestrichelte Linie dient als Hilfslinie)

In der Ableitung dM/dT (siehe Inset von Abbildung 5.15(b)) kann ein einzelnes Minimum sowohl für in-plane als auch out-of-plane orientierte Magnetfelder beobachtet werden. Die Magnetisierung der einzelnen SrRuO_3 Lagen in der Heterostruktur sollte daher ein ähnliches Verhalten zeigen.

Um den Einfluss der $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Grenzflächen zu untersuchen, wurde für eine Bilage $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$, eine Trilage $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$, sowie für zwei Heterostrukturen $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ mit $k = 5$ und $k = 10$ die temperaturabhängige Magnetisierung verglichen. Zudem wurde ein reiner SrRuO_3 Film als magnetisches Referenzmaterial gemessen. Die gemessene Magnetisierung ist für ein in-plane orientiertes Magnetfeld $\mu_0 H = 0,05$ T in Abbildung 5.16(a) gezeigt.

Im Vergleich zu der reinen SrRuO_3 Schicht zeigen die $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Schichtsysteme neben einer reduzierten Magnetisierung auch eine Verschiebung der

Curietemperatur T_C zu tieferen Temperaturen. Je weniger Wiederholungen an SrRuO₃ Lagen in der Überstrukturen vorhanden sind, umso niedriger ist die Curietemperatur der Probe (siehe Tabelle 5.4). Ishigami *et al.* [178] zeigten für reine SrRuO₃ Filme mit Schichtdicken zwischen 2 Monolagen und 20 Monolagen eine Verschiebung von T_C mit der Schichtdicke. Der Vergleich zwischen einer reinen SrRuO₃ Probe mit 41 Monolagen und einer [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₁₀ Heterostruktur mit insgesamt 50 Monolagen des ferromagnetischen SrRuO₃ zeigt jedoch eine niedrigere Curietemperatur und Magnetisierung für die Heterostruktur. Diese Reduzierung sollte daher von Grenzflächeneffekten zwischen dem ferromagnetischen SrRuO₃ und dem paramagnetischen, Spin-Bahn gekoppelten SrIrO₃ resultieren.

Dichtefunktionaltheoretische (DFT) Rechnungen (siehe Appendix D) zeigen, dass in der Heterostruktur das magnetische Spinmoment des Rutheniums der inneren SrRuO₃ Lagen mit $M_{\text{Ru}} \approx 1,41 \mu_B$ vergleichbar mit dem berechneten Moment in reinem SrRuO₃ ist. An der Grenzfläche zu SrIrO₃ ist das magnetische Moment mit $M_{\text{Ru}} \approx 1,38 \mu_B$ reduziert. Am Beispiel einer [(SrRuO₃)₃/(SrIrO₃)₂]₂ Heterostruktur wurde theoretisch die magnetische Kopplung zwischen zwei SrRuO₃ Schichten, die durch SrIrO₃ voneinander getrennt sind, bestimmt. Hier ergab sich, dass eine ferromagnetische Kopplung zwischen den SrRuO₃ Schichten energetisch günstiger ist.

Aufgrund der gebrochenen Inversionssymmetrie an der Grenzfläche zwischen SrRuO₃ und SrIrO₃ ordnen sich die Spins wegen der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung nicht-kollinear zueinander an. Im Vergleich zu den magnetischen Momenten im reinen SrRuO₃ sind daher nicht alle Spins ferromagnetisch geordnet und es ergibt sich eine reduzierte Magnetisierung. In den symmetrisch aufgebauten Heterostrukturen mit k Wiederholungen der Bilagenstruktur (vgl. dazu Abb. 5.17) weisen $k - 1$ der SrRuO₃ Lagen eine obere und eine untere Grenzfläche

Tab. 5.4.: Aus der temperaturabhängigen Magnetisierung ermittelte Curietemperatur T_C von verschiedenen Multilagen im Vergleich mit einer reinen SrRuO₃ Probe als magnetische Referenz.

Film	Monolagen SrRuO ₃	Grenzflächen	T_C (K)
SrRuO ₃	41	—	157(1)
[(SrRuO ₃) ₅ /(SrIrO ₃) ₂] ₁₀	50	19	145(1)
[(SrRuO ₃) ₅ /(SrIrO ₃) ₂] ₅	25	9	137(1)
(SrRuO ₃) ₅ /(SrIrO ₃) ₂ /(SrRuO ₃) ₅	10	2	126(2)
(SrIrO ₃) ₂ /(SrRuO ₃) ₅	5	1	102(2)

zu SrIrO_3 auf. Aus geometrischen Gründen zeigt die resultierende Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung an diesen Grenzflächen in entgegengesetzte Richtungen, weshalb die Drehung der Spins an den beiden Grenzflächen in gegenüberliegenden Richtungen erfolgt. Ist das Magnetfeld senkrecht zur Grenzfläche orientiert, so heben sich die Effekte der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkungen gegenseitig auf. Bei einer Magnetfeldorientierung parallel zur Grenzfläche werden die Spins ebenfalls in unterschiedliche Richtungen aus der Grenzfläche heraus gedreht. Für die Magnetisierung innerhalb der Filmebene, d.h. parallel zur Grenzfläche, ergibt sich

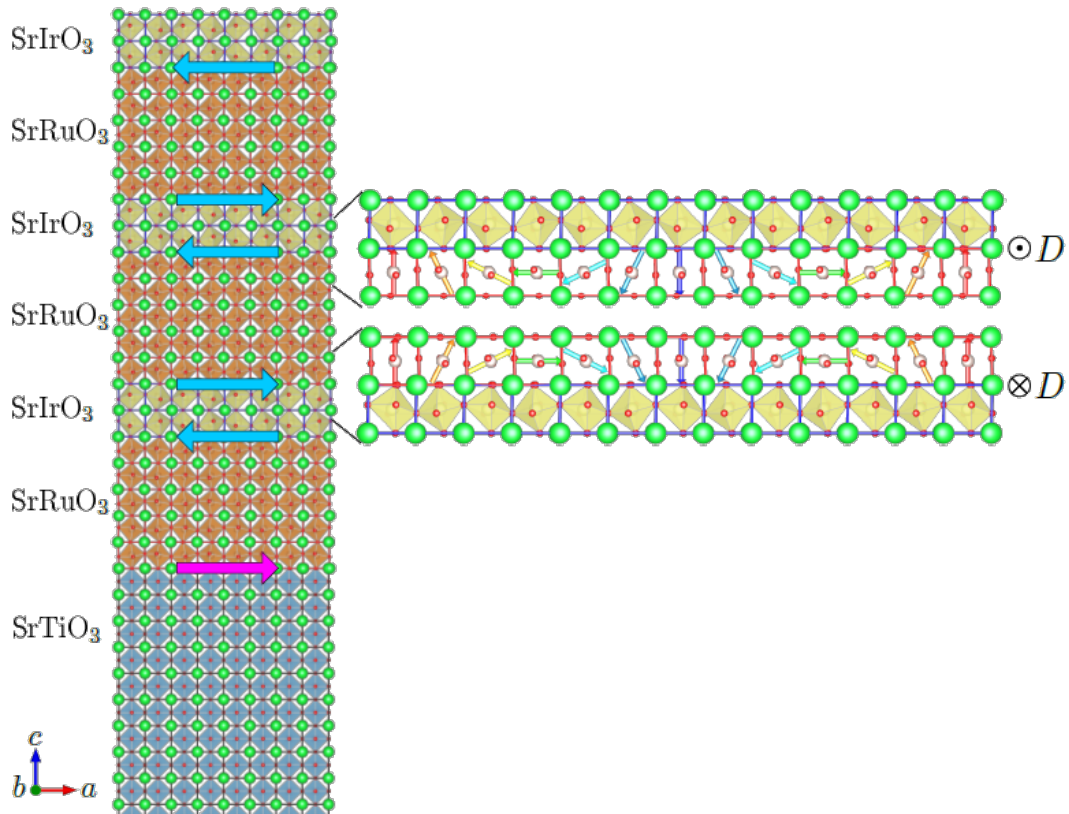


Abb. 5.17.: *Links:* Orientierung der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung (DMI) D an der Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 (blau) und zwischen SrRuO_3 und SrTiO_3 (magenta). Durch den symmetrischen Aufbau der Schichtstruktur zeigen die DMI-Vektoren an der oberen und unteren Grenze in entgegen gesetzte Richtungen und heben sich dadurch auf.

Rechts: Schematische Darstellung der Spinanordnung einer symmetrisch umgebenen SrRuO_3 Schicht. Durch die unterschiedlichen Richtungen von D drehen die Spins an der einen Grenzfläche im Uhrzeigersinn und an der anderen entgegen dem Uhrzeigersinn [50]. Dadurch heben sich die gegensätzlich orientierten Drehungen der Spins auf. Für eine bessere Sichtbarkeit der Spins werden für die SrRuO_3 Lagen an der Grenzfläche die Sauerstoffoktaeder nicht gezeigt.

jedoch an beiden Grenzflächen dieselbe Projektion des magnetischen Moments in Richtung der Grenzfläche. Bei dem Vergleich des temperaturabhängigen Verlaufs der Magnetisierung der einzelnen Bilage und der Multilagen mit der Schichtdickenabhängigkeit bei Ishigami *et al.* [178] zeigt sich, dass in den Heterostrukturen die Magnetisierung nur etwa 50 % bis 80 % im Vergleich zu einer identischen Anzahl an SrRuO₃ Monolagen in einem reinem Dünnsfilm beträgt. Mit steigender Anzahl k an Wiederholungen der Bilagenstruktur nähert sich die Curietemperatur der Heterostruktur dem Wert der reinen, dicken SrRuO₃ Schicht an.

In Abbildung 5.18 sind für eine [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₁₀ Heterostruktur die feldabhängige Magnetisierung für ein senkrecht zur Filmebene orientiertes Magnetfeld exemplarisch für zwei konstante Temperaturen (50 K und 80 K) dargestellt. Die gemessene Magnetisierung M_{total} kann als Summe $M_1 + M_2$ zweier einzelner Magnetisierungen:

$$M_1 = M_{s1} \cdot \tanh\left(\frac{H - H_{c1}}{H_{s1}}\right)$$

$$M_2 = M_{s2} \cdot \tanh\left(\frac{H - H_{c2}}{H_{s2}}\right)$$

beschrieben werden. Dabei stellt M_{si} die Sättigungsmagnetisierung und H_{ci} das Koerzitivfeld der Einzelmagnetisierung dar. Der Kurvenverlauf der Hysterese lässt sich mit dem Feld H_{si} beschreiben.

Die Gesamtmagnetisierung M_{total} wird dabei hauptsächlich durch die Magne-

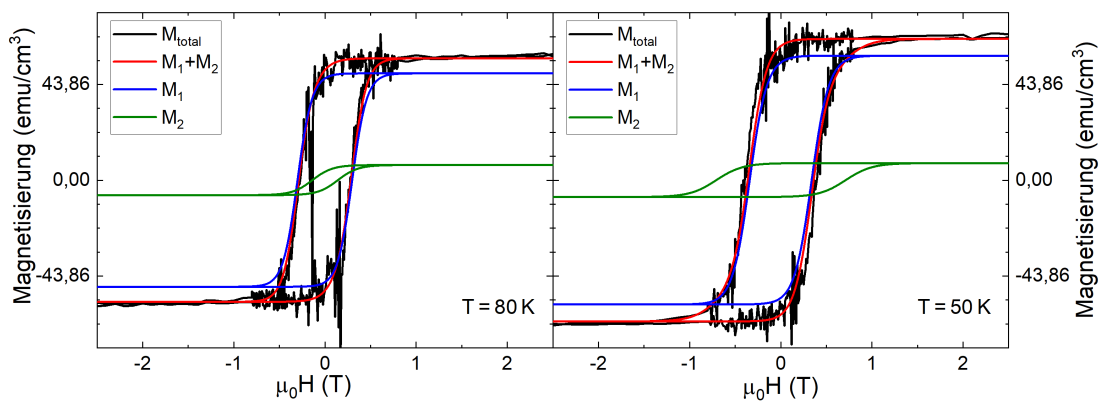


Abb. 5.18.: Feldabhängige Magnetisierung einer [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₁₀ Heterostruktur mit Magnetfeldorientierung senkrecht zur Probenoberfläche. An die gemessene Magnetisierung M_{total} wurde ein 2-Kanal Modell $M_1 + M_2$ aus zwei unabhängigen Magnetisierungskanälen angepasst.

tisierung M_1 dominiert und lediglich $\sim 12\%$ trägt M_2 zur Gesamtmagnetisierung M_{total} bei. In Abschnitt 5.5.1 wird auf die charakteristischen Felder H_{c1} , H_{s1} , H_{c2} und H_{s2} noch näher eingegangen.

5.5. Magnetfeldabhängigkeit des elektrischen Transports

Vor der Untersuchung des Einflusses eines externen Magnetfelds auf die elektrischen Transporteigenschaften soll zunächst der temperaturabhängige Widerstandsverlauf im feldfreien Fall betrachtet werden. Abbildung 5.19 zeigt diesen für eine $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage im Vergleich mit zwei $[(\text{SrRuO}_3)_m/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostrukturen, einmal mit $m = 5$ Monolagen und einmal mit $m = 7$ Monolagen. Zudem sind die Widerstandsverläufe eines 31,9 nm dicken SrRuO_3 und eines 30,7 nm dicken SrIrO_3 Films dargestellt.

Bei höheren Temperaturen zeigt der Widerstandsverlauf der Heterostrukturen eine ähnliche, lineare Temperaturabhängigkeit wie in reinen SrRuO_3 Dünnschichten. Unterhalb der ferromagnetischen Ordnung kann für die Heterostrukturen und

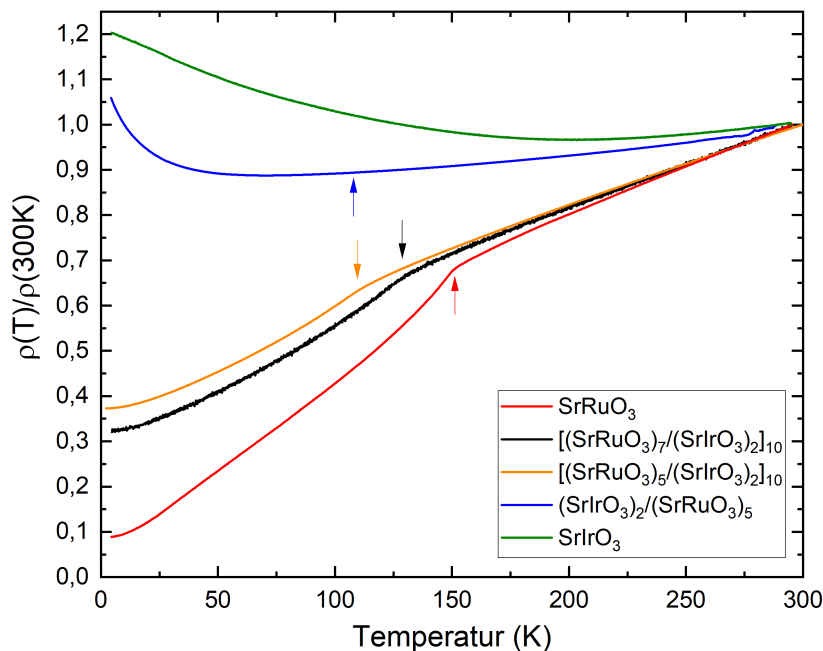


Abb. 5.19.: Vergleich des temperaturabhängigen Widerstandsverlaufs einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage mit zwei Heterostrukturen $[(\text{SrRuO}_3)_m/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ mit $m=5$ Monolagen und $m=7$ Monolagen, sowie mit den Einzelsystemen SrRuO_3 und SrIrO_3 . Die Pfeile markieren die ferromagnetische Ordnungstemperaturen.

für den SrRuO_3 Film eine Abnahme des Widerstands beobachtet werden. Dabei zeigt die Heterostruktur mit 7 Monolagen SrRuO_3 pro Bilage eine größere Widerstandsabnahme als die Probe mit 5 Monolagen SrRuO_3 pro Bilage. Eine mögliche Erklärung dafür kann an den zwei zusätzlichen Monolagen SrRuO_3 pro Bilage liegen. Für reine SrRuO_3 Filme ist bekannt, dass mit abnehmender Schichtdicke die Widerstandsabnahme geringer wird [185, 188]. Dies zeigt sich auch im Vergleich der Widerstandsverläufe der einzelnen $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage (blaue Kurve in Abb. 5.19) mit der $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur, also zehn Wiederholungen derselben Bilage (orange Kurve in Abb. 5.19). In der Bilage ist die Widerstandsabnahme im Temperaturbereich von 300 K bis 50 K sehr viel geringer. Außerdem erkennt man in der Bilage bei tiefen Temperaturen eine Zunahme des elektrischen Widerstands. Dies lässt sich ebenfalls mit der geringen Schichtdicke der Bilage erklären, wodurch es zum Beispiel zu Lokalisierungseffekten kommen kann [222].

Für die Untersuchung des Magnetfeldeinflusses auf den Widerstand wurde dieser als Hall-Effekt ($\rho_{xy}(H)$) und als Magnetwiderstand ($\rho_{xx}(H)$) gemessen. Bei einer Umkehr des Magnetfelds ändert sich das Vorzeichen im Hall-Effekt, wogegen der Magnetwiderstand symmetrisch ist. Die aufgenommenen Widerstände wurden daher für die Auswertung des Magnetwiderstands (Hall-Effekt) wie folgt symmetrisiert (antisymmetrisiert):

$$\begin{aligned}\rho_{xx}(H) &= \frac{\rho_{xx,\uparrow}(H) + \rho_{xx,\downarrow}(-H)}{2} \\ \rho_{xy}(H) &= \frac{\rho_{xy,\uparrow}(H) - \rho_{xy,\downarrow}(-H)}{2}\end{aligned}$$

Hierfür wurde der Widerstand jeweils für Magnetfeldänderungen von positiven zu negativen (ρ_{\downarrow}) und von negativen zu positiven (ρ_{\uparrow}) Feldern aufgenommen.

5.5.1. Temperaturabhängigkeit im senkrecht zur Probe orientierten Magnetfeld

Die Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit des Hall-Effekts und des Magnetwiderstands wurden an $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostrukturen mit $k = 5$ und $k = 10$ durchgeführt, da bei diesen im Gegensatz zu einer reinen Bilage das Signal-zu-Rausch Verhältnis besser ist, und somit der Widerstand genauer bestimmt werden konnte.

Temperaturabhängiger Hall-Effekt

Abbildung 5.20 zeigt den isothermen Hall-Effekt für Temperaturen $T < T_C$. Der Beitrag des normalen Hall-Effekts ρ_{OHE} wurde durch lineare Regression im Hochfeldbereich ($|\mu_0 H| \geq 3 \text{ T}$) bestimmt und anschließend vom gemessenen Hallwiderstand ρ_{xy} abgezogen. Die Temperaturabhängigkeit der normalen Hallkonstante R_0 ist in Abbildung 5.32(a) abgebildet.

Deutlich lässt sich im Hall-Effekt eine Hysterese erkennen, die durch den anomalen Hall-Effekt ρ_{AHE} (vgl. hierzu Gleichung (2.4.2)) hervorgerufen wird. Bei

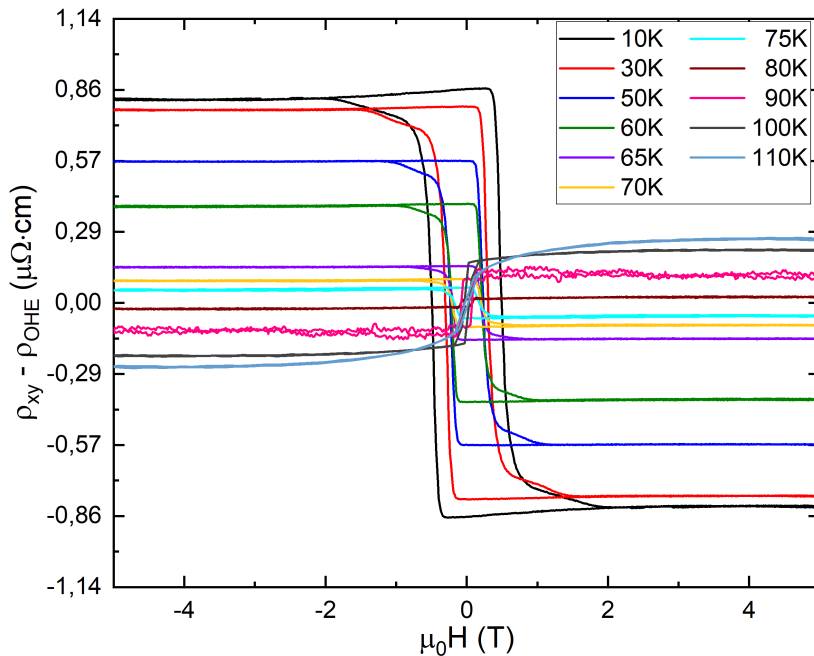


Abb. 5.20.: Isothermer Hall-Effekt für verschiedene Temperaturen einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur. In der Auftragung ist vom gemessenen Hall-Effekt ρ_{xy} der normale Hall-Effekt ρ_{OHE} abgezogen.

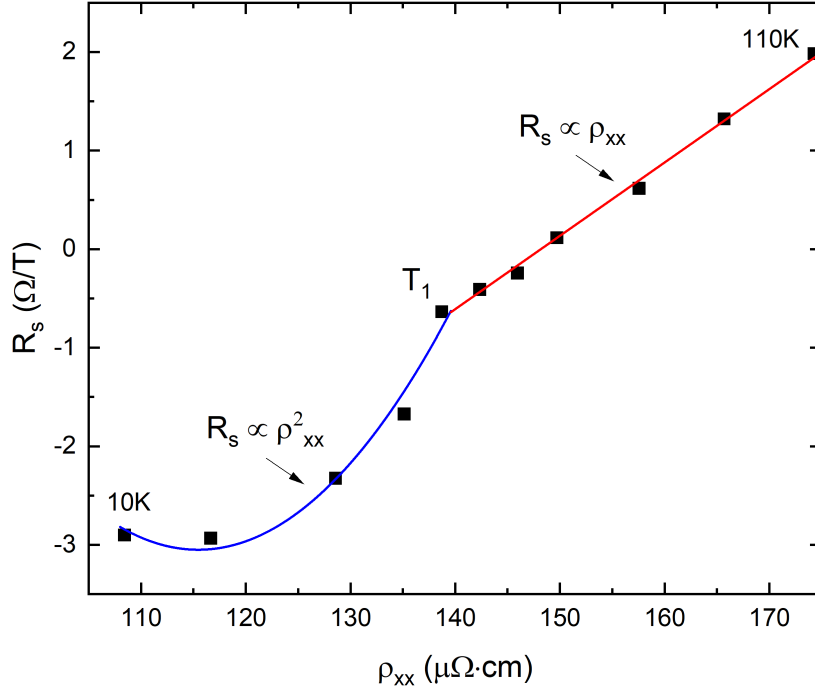


Abb. 5.21.: Abhängigkeit der anomalen Hallkonstante R_s vom Längswiderstand ρ_{xx} einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur.

tiefen Temperaturen weist der anomalen Hall-Effekt ein negatives Vorzeichen auf. Mit steigender Temperatur nimmt der Beitrag durch den anomalen Hall-Effekt ab. Zwischen 75 K und 80 K ist ein Vorzeichenwechsel von ρ_{AHE} zu beobachten. Anschließend wächst der Beitrag des anomalen Hall-Effekts bis 110 K wieder an.

Für die Bestimmung der anomalen Hallkonstante R_s wird der Widerstand im Hochfeldbereich (ρ_{AHE}) durch die gemessene out-of-plane Magnetisierung M (vgl. Abschnitt 5.4) geteilt. Die so bestimmten Werte sind in Tabelle 5.5 aufgeführt.

In Abbildung 5.21 ist der Verlauf von R_s über dem Längswiderstand ρ_{xx} aufgetragen. Hier können zwei unterschiedliche Bereiche beobachtet werden. Im Temperaturbereich $65 \text{ K} \leq T \leq 110 \text{ K}$ zeigt die anomale Hallkonstante eine lineare Abhängigkeit vom Längswiderstand ($R_s \propto \rho_{xx}$). Dies lässt auf das extrinsische Skew-Scattering als dominanten Streumechanismus in diesem Temperaturbereich schließen. Bei tieferen Temperaturen $10 \text{ K} \leq T \leq 65 \text{ K}$ zeigt sich dagegen eher eine quadratische Abhängigkeit ($R_s \propto \rho_{xx}^2$). Damit stellen in diesem Temperaturintervall das Side-Jump-Scattering und der intrinsische Beitrag durch die Berry-Phase die dominanten Streumechanismen dar. Die Änderung zwischen der quadratischen und der linearen Abhängigkeit tritt bei $T_1 \approx 65 \text{ K}$ ein.

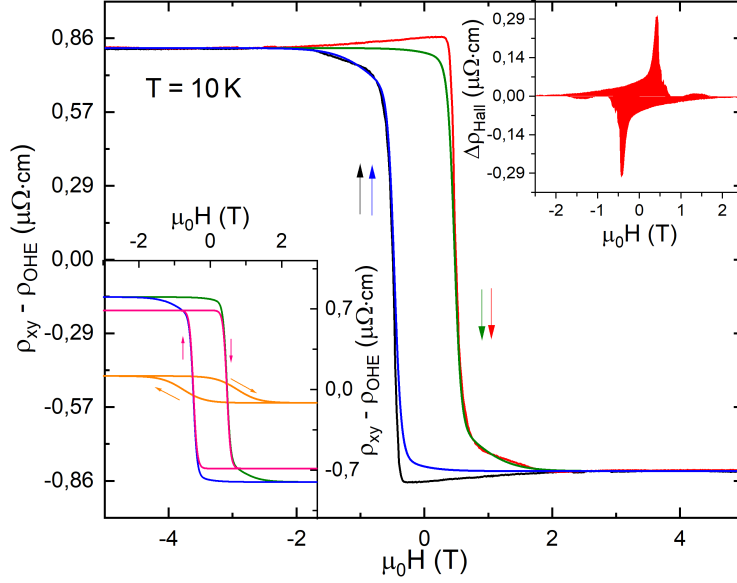


Abb. 5.22.: Anpassung des 2-Kanal Modells zur Beschreibung des anomalen Hall-Effekts (blau und grün) im experimentell bestimmten Hall-Effekt (schwarz und rot) einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur. Das Inset oben rechts zeigt die Differenz zwischen Experiment und Modell, wogegen im Inset unten links die Verläufe der einzelnen Kanäle dargestellt ist. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Zur Beschreibung des anomalen Hall-Effekts wurde das von Groenendijk *et al.* [2, 215] vorgeschlagene 2-Kanal Modell:

$$\rho_{\text{AHE}} = \rho_{s1} \cdot \tanh\left(\frac{H - H_{c1}}{H_{s1}}\right) + \rho_{s2} \cdot \tanh\left(\frac{H - H_{c2}}{H_{s2}}\right) \quad (5.1)$$

verwendet. Die charakteristischen Felder H_{c1} , H_{s1} , H_{c2} und H_{s2} haben dabei dieselbe Bedeutung wie im Abschnitt 5.4 beim Modell zur Beschreibung der magnetischen Eigenschaften. ρ_{s1} und ρ_{s2} geben die Amplituden des jeweiligen Kanals an, mit dem dieser zum Hall-Effekt beiträgt.

Abbildung 5.22 zeigt exemplarisch bei 10 K die Anpassung dieses 2-Kanal Modells an die Differenz $\rho_{xy} - \rho_{\text{OHE}}$. Wie zu sehen ist, lässt sich mit diesem Modell der Beitrag des anomalen Hall-Effekts gut beschreiben. In der Differenz $\Delta\rho_{\text{Hall}} = (\rho_{xy} - \rho_{\text{OHE}}) - \rho_{\text{Fit}}$ zwischen gemessenem Hall-Effekt und dem 2-Kanal Modell findet man für Temperaturen $T \leq 80$ K einen zusätzlichen Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$. Abbildung 5.23(a) zeigt die Feldabhängigkeit von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ für die Magnetfeldänderung von -5 T nach 5 T.

In $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ lässt sich ein deutliches Maximum bei dem Feld H_{sk} beobachten, das temperaturunabhängig in der Nähe des Koerzitivfeldes H_{c1} auftritt (Abb. 5.23(b)). Mit zunehmender Temperatur nimmt die Größe von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ ab, bis der zusätzliche Beitrag für Temperaturen $T \geq 90$ K verschwindet. Zwischen dem Feld H_{sk} und dem Koerzitivfeld H_{c1} lässt sich für alle Temperaturen eine konstante Verschiebung $\Delta H = H_{\text{c1}} - H_{\text{sk}} \approx 0,1$ T beobachten. Dies lässt darauf schließen, dass der Ursprung des zusätzlichen Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ erst unterhalb 80 K stabil ist. $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ tritt zudem bei allen Temperaturen in einem Feldbereich auf, in dem sich das Vorzeichen des dominanten Streukanals im anomalen Hall-Effekt ändert. Da der anomale Hall-Effekt nach Gleichung (2.4.2) proportional zur Magnetisierung ist, ändert sich somit auch das Vorzeichen in der Magnetisierung. Der Ursprung des zusätzlichen Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ tritt somit in einem Feldbereich auf, in dem sich die Magnetisierungsrichtung umkehrt.

Unter der Annahme, dass der zusätzliche Beitrag im Hall-Effekt durch Skyrmionen erzeugt wird, d.h. mit dem topologischen Hall-Effekt $\rho_{\text{THE}} = \Delta\rho_{\text{Hall}}$ gleichgesetzt werden kann, lässt sich die Skyrmionendichte n_{sk} mittels Gleichung (2.10) berechnen. Für die Spinpolarisation der Leitungselektronen im SrRuO_3 wurde ein Wert von $-9,5\%$ verwendet, der in der Literatur [17, 207] als typischer Wert im SrRuO_3 angenommen wird. Die so berechneten Werte sind in Tabelle 5.5 aufgelistet.

Tab. 5.5.: Temperaturabhängigkeit der berechneten Skyrmionendichte n_{sk} aus dem zusätzlichen Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$, sowie der normalen Hallkonstante R_0 und der anomalen Hallkonstante R_s

T (K)	n_{sk} ($10^{-3}/\text{nm}^2$)	R_0 ($\text{m}\Omega/\text{T}$)	R_s (Ω/T)
10	4,57(5)	-56,22(5)	-2,90(3)
30	4,72(5)	-51,68(3)	-2,93(4)
50	3,69(5)	-46,68(2)	-2,33(3)
60	2,29(6)	-44,32(3)	-1,67(2)
65	3,21(2)	-21,42(2)	-0,63(5)
70	1,67(2)	-20,73(2)	-0,41(3)
75	0,71(2)	-20,58(2)	-0,24(5)
80	0,78(3)	-19,06(3)	0,11(2)
90	0	-17,8(3)	0,61(2)
100	0	-14,2(1)	1,32(3)
110	0	-10,3(3)	1,98(5)

Für Temperaturen $T \geq 90$ K verschwindet die Skyrmionendichte n_{sk} . Dies lässt den Schluss zu, dass oberhalb 90 K die Bildung von Skyrmionen nicht stabil ist. Zwischen 50 K und 80 K nimmt die Skyrmionendichte mit abnehmender Temperatur zu. Eine mögliche Erklärung hierfür kann die Bildung einzelner, voneinander getrennter Skyrmionen sein. Im Temperaturbereich zwischen $10 \text{ K} \leq T \leq 30 \text{ K}$ ist n_{sk} im Rahmen des Fehlers relativ konstant. Dies lässt darauf schließen, dass die Anzahl der möglichen Skyrmionen in diesem Temperaturbereich sich nicht stark verändert. Eine mögliche Erklärung hierfür kann die Anordnung der Skyrmionen auf einem regulären Gitter sein.

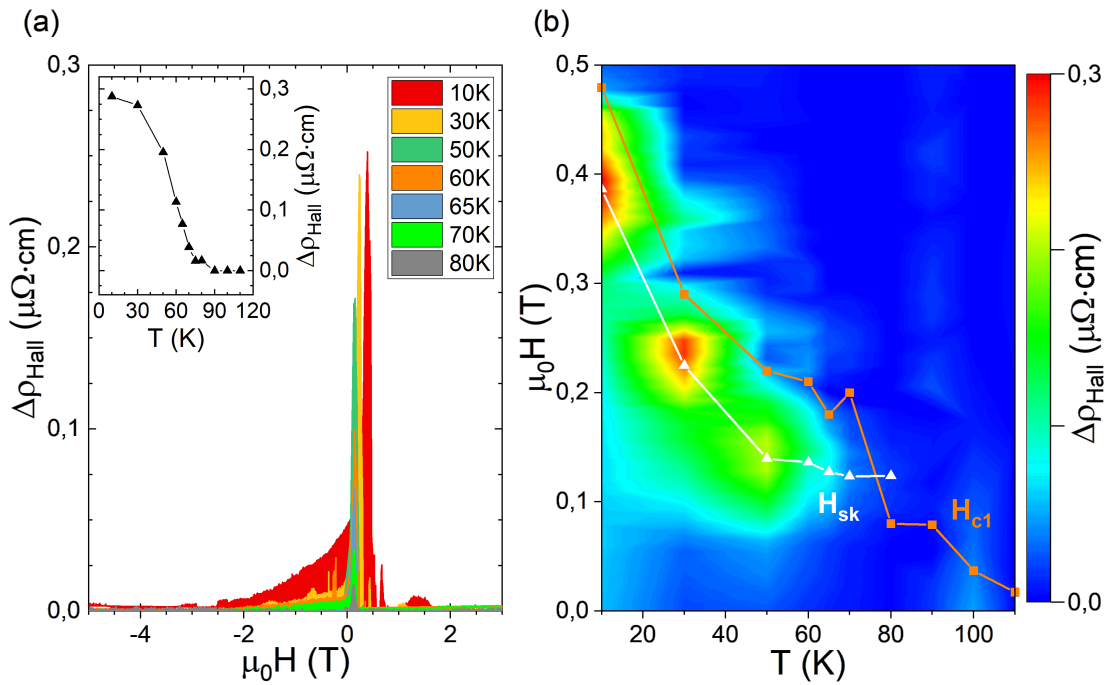


Abb. 5.23.: (a) Feldabhängigkeit des zusätzlichen Hallbeitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ von einem senkrecht zur Probenoberfläche angelegtem Magnetfeld bei konstanter Temperatur für die Feldänderung von -5 T nach 5 T. Im Inset ist der temperaturabhängige Verlauf des Maximums von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ aufgetragen.

(b) Temperatur-Magnetfeld Phasendiagramm für die Feldänderung von -5 T nach 5 T. Zusätzlich sind die temperaturabhängigen Verläufe des Koerzitivfeldes H_{c1} (gelb) und des Feldes H_{sk} (weiß), bei dem das Maximum von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zu beobachten ist, dargestellt. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Unter der Voraussetzung, dass die Skyrmionen auf einem regulären Gitter angeordnet sind, kann aus der Skyrmionendichte n_{sk} die Größe der Skyrmionen mit der Beziehung $r_{\text{sk}} \approx 1/\sqrt{n_{\text{sk}}}$ abgeschätzt werden [207]. Die so erhaltenen Skyrmionengrößen liegen für Temperaturen $T \leq 65$ K im Bereich $14 \text{ nm} \leq r_{\text{sk}} \leq 20 \text{ nm}$. Bei dieser Abschätzung wird die Skyrmionendichte n_{sk} für Skyrmionen auf einem periodisch angeordneten Gitter angenommen. Dies gilt ebenfalls für den Temperaturbereich zwischen 70 K und 80 K bei dem sich die ersten Skyrmionen bilden. In diesem Bereich werden daher die Skyrmionengrößen überschätzt.

In Abbildung 5.24 sind für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ Heterostruktur der experimentell gemessene Hall-Effekt zusammen mit der Modellierung des anomalen Hall-Effekts durch das 2-Kanal Modell dargestellt. Genauso wie bei der zuvor beschriebenen $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur, also bei doppelt so vielen Wiederholungen der gleichen Bilagenstruktur $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$, kann der Beitrag des anomalen Hall-Effekts durch das verwendete Modell gut beschrieben werden, wobei vor allem bei tiefen Temperaturen der zusätzliche Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ des gemessenen Hall-Effekts zu beobachten ist.

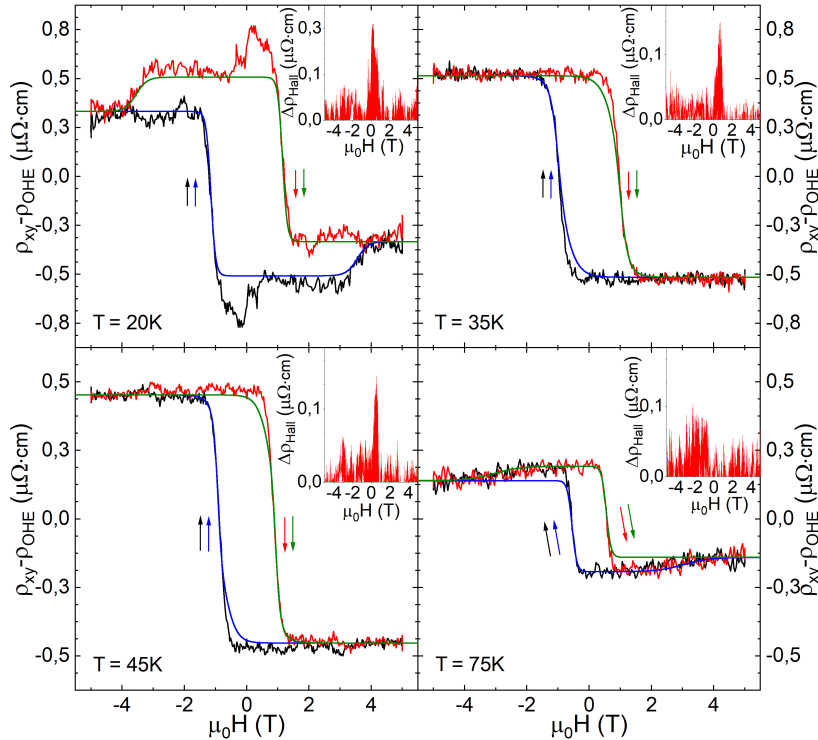


Abb. 5.24.: Experimentell gemessener Hall-Effekt (schwarz und rot) einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ Heterostruktur und Modellierung des anomalen Hall-Effekts (blau und grün) mit dem 2-Kanal Modell. Im Inset ist die Differenz $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zwischen Modell und Experiment dargestellt.

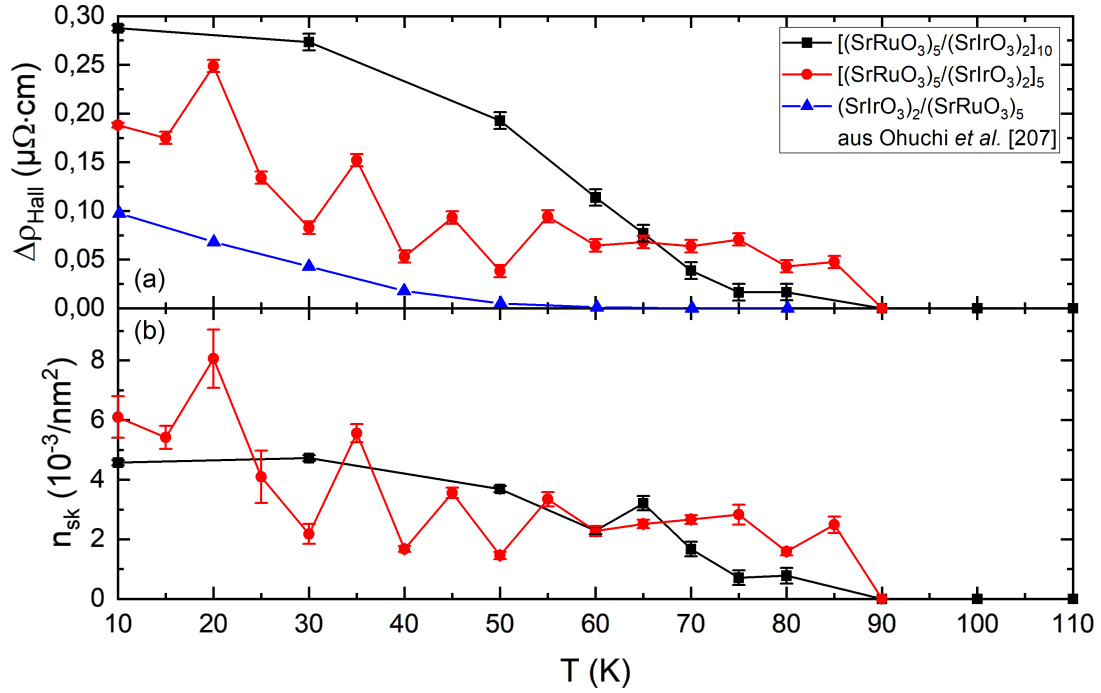


Abb. 5.25.: (a) Vergleich des temperaturabhängigen Verlaufs des zusätzlichen Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ in einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ (rot) und einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ (schwarz) Heterostruktur. In blau ist der Verlauf des zusätzlichen Beitrags in einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage aus Ohuchi *et al.* [207] gezeigt.
 (b) Verlauf der berechneten Skyrmionendichte n_{sk} der beiden Heterostrukturen.

Vergleicht man den temperaturabhängigen Verlauf von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ der beiden vorgestellten Heterostrukturen (siehe Abb. 5.25(a)) lässt sich ein ähnliches Verhalten unabhängig von den Wiederholungen k der Bilage $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ erkennen. Die nach Gleichung (2.10) berechneten Skyrmionendichten n_{sk} beider Heterostrukturen nehmen beide mit steigender Temperatur ab (siehe Abb. 5.25(b)). Bei der Abschätzung der Skyrmionengröße ergeben sich für Temperaturen $T \leq 60$ K sowohl bei der $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_5$ als auch bei der $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur Werte im Bereich $12 \text{ nm} \leq r_{\text{sk}} \leq 26 \text{ nm}$. Oberhalb von 90 K sind in beiden Strukturen keine Skyrmionen stabil.

Trotz der doppelten Anzahl an $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Bilagen treten in der Heterostruktur mit $k = 10$ Wiederholungen keine größeren Skyrmionen auf. Dies lässt sich mit der in Abschnitt 5.4 beschriebenen Orientierung der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung (DMI) innerhalb einer symmetrischen $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostruktur erklären. Durch den symmetrischen Aufbau heben sich die DMI -

Vektoren in $(k - 1)$ SrRuO₃ Schichten auf, sodass effektiv nur an einer einzelnen Grenzfläche Skyrmionen ausgebildet werden und sich daher weder eine Vergrößerung der Skyrmionen noch eine Stabilisierung von ihnen bei höheren Temperaturen durch das wiederholte Wachstum derselben Bilagenstruktur einstellt.

Der Vergleich des temperaturabhängigen Verlaufs des zusätzlichen Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ (siehe Abb. 5.25(a)) einer (SrIrO₃)₂/(SrRuO₃)₅ Bilage von Ohuchi *et al.* [207], den sie als topologischen Hall-Effekt (ρ_{THE}) von Skyrmionen der Größe $12\text{ nm} \leq r_{\text{sk}} \leq 15\text{ nm}$ identifiziert haben, unterstützt diese Annahme. Die abgeschätzte Größe der Skyrmionen liegt in der Bilage von Ohuchi *et al.* in der selben Größenordnung wie in den betrachteten Heterostrukturen in dieser Arbeit. Dagegen ist der zusätzliche Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ in den Heterostrukturen zum einen betragsmäßig größer und zum anderen zu höheren Temperaturen beobachtbar als in der einzelnen Bilagenstruktur.

Temperaturabhängiger Magnetwiderstand

Der temperaturabhängige Magnetwiderstand $\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}$ in einem senkrecht zur Probe angelegten Magnetfeld ist in Abbildung 5.26(a) für [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₁₀ und in Abbildung 5.26(b) für [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₅ dargestellt. Beide Heterostrukturen zeigen bei tiefen Temperaturen einen positiven Magnetwiderstand im Bereich größerer Felder, wohingegen bei höheren Temperaturen der Magnetwiderstand bei größeren Feldern negativ ist. Der Übergang liegt bei 60 K. Dieser ist damit

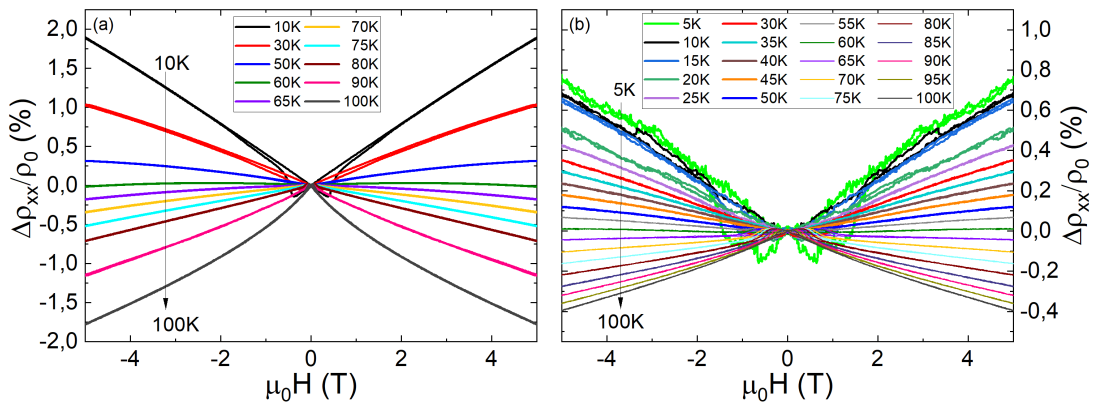


Abb. 5.26.: Isothermer Magnetwiderstand für verschiedene Temperaturen einer (a) [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₁₀ Heterostruktur und einer (b) [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]₅ Heterostruktur. Bei tiefen Temperaturen zeigt die Heterostruktur einen positiven und bei hohen Temperaturen einen negativen Magnetwiderstand.

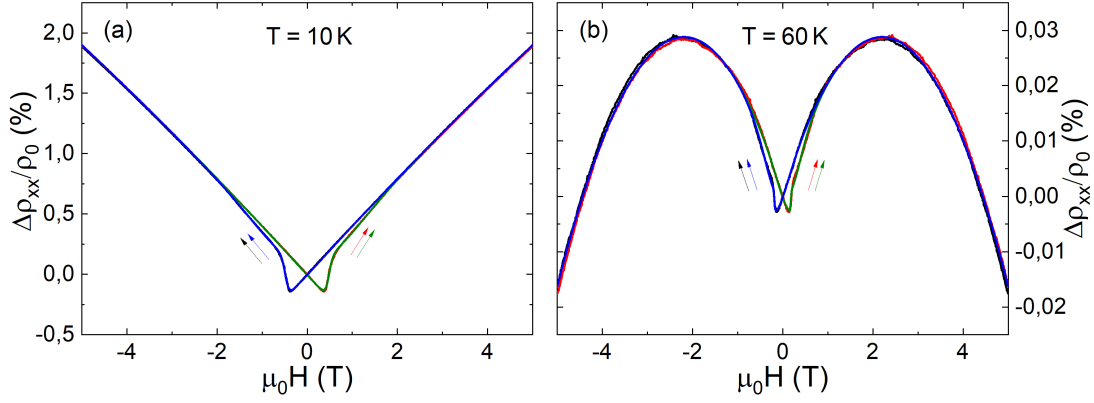


Abb. 5.27.: Anpassung des gemessenen Magnetwiderstands (schwarz und rot) einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur mit dem aufgestellten 2-Kanal Modell (blau und grün) bei (a) 10 K und (b) 60 K. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

im Bereich der Temperatur T_1 , bei der sich die Abhängigkeit der anomalen Hallkonstanten R_s vom Längswiderstand ändert. Im Bereich kleiner Felder dagegen lässt sich im Magnetwiderstand eine Hysterese beobachten, die mit zunehmender Temperatur abnimmt. Dagegen zeigt der Magnetwiderstand bei größeren Feldern einen linearen Verlauf.

Für die Beschreibung der Feldabhängigkeit des Magnetwiderstands wurde ein neues Modell aufgestellt. Dieses geht, analog zu dem 2-Kanal Modell zur Beschreibung des anomalen Hall-Effekts, von zwei unabhängigen Leitungskanälen aus. Nimmt man weiterhin an, dass der Beitrag des Einzelmagnetwiderstands $\left(\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}\right)_{si} \propto B_i^2$, mit $B_i = \mu_0(H + M_i)$, dann ergibt sich der gesamte Magnetwiderstand als Summe der Einzelmagnetwiderstände $\left(\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}\right)_{s1}$ und $\left(\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}\right)_{s2}$ zu:

$$\begin{aligned}
 \frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0} &= \left(\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}\right)_{s1} + \left(\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}\right)_{s2} \\
 &= A \left[H + M_{s1} \cdot \tanh\left(\frac{H - H_{c1}}{H_{s1}}\right) \right]^2 \\
 &\quad + C \left[H + M_{s2} \cdot \tanh\left(\frac{H - H_{c2}}{H_{s2}}\right) \right]^2
 \end{aligned} \tag{5.2}$$

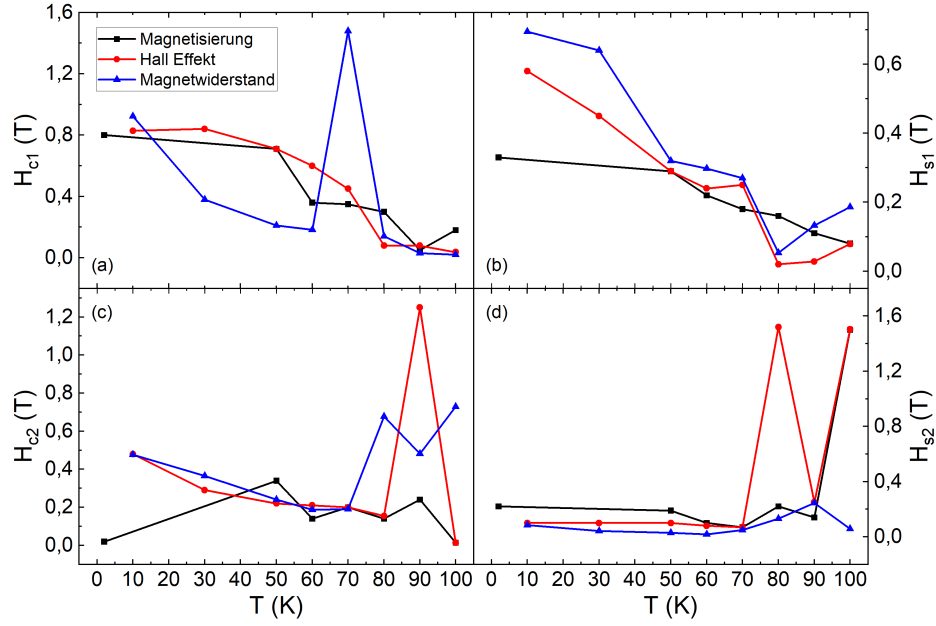


Abb. 5.28.: Vergleich der charakteristischen Felder aus Messung der Magnetisierung, des Hall-Effekts und des Magnetwiderstands einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur.

Dabei stellen A und C Fitparameter dar, mit denen die Gewichtung der Einzelbeiträge berücksichtigt wird. Die charakteristischen Felder sind wie bei der Modellierung der Magnetisierung und des anomalen Hall-Effekts ρ_{AHE} definiert.

Für zwei Temperaturen ist in Abbildung 5.27(a) und 5.27(b) die Anpassung des gemessenen Magnetwiderstands einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur mit dem aufgestellten Modell dargestellt. Es zeigt sich, dass mit dem Modell die Feldabhängigkeit des Magnetwiderstands für alle Temperaturen gut wiedergegeben werden kann.

Den Vergleich der charakteristischen Felder H_{c1} , H_{s1} , H_{c2} und H_{s2} , die sich aus der Modellierung der Magnetisierung (siehe Abschnitt 5.4) und des anomalen Hall-Effekts ρ_{AHE} ergeben mit denen aus dem aufgestellten Modell des Magnetwiderstands sind in Abbildung 5.28 dargestellt. Die Verläufe für die drei unterschiedlichen Messmethoden ähneln sich sehr gut. Die Unterschiede können durch verschiedene Sensitivitäten der drei Messtechniken resultieren.

5.5.2. Einfluss eines zur Probennormalen gedrehten Magnetfeld

Der Einfluss der Magnetfeldorientierung in Bezug zur Probennormalen und zur Stromrichtung auf den elektrischen Transport wurde an einer Heterostruktur untersucht. Dazu wurde der Winkel zwischen anliegendem Magnetfeld \vec{H} und der Normalen \vec{n} der Probenoberfläche variiert. In Abbildung 5.29 ist die Lage der kartesischen Achsen, also auch der verwendeten Drehwinkel θ und β , dargestellt. In der verwendeten Definition fließt der Strom I entlang der x -Richtung. Der Magnetwiderstand wird damit entlang der x -Achse und der Hall-Effekt entlang der y -Achse gemessen. Die Richtung senkrecht zur Probenoberfläche liegt parallel zur z -Achse.

Eine Drehung des Magnetfelds in der xz -Ebene wird mit dem Drehwinkel θ bezeichnet. $\vec{H}(\theta = 0^\circ) = \vec{H}_z$ entspricht dabei einer Magnetfeldorientierung senkrecht zur Probenoberfläche. Dies entspricht der Orientierung des Magnetfelds aus Abschnitt 5.5.1. Die Feldorientierung $\vec{H}(\theta = 90^\circ) = \vec{H}_x$ liegt dagegen in der Filmebene und ist parallel zum angelegten Stromfluss I . Der Drehwinkel β bezeichnet

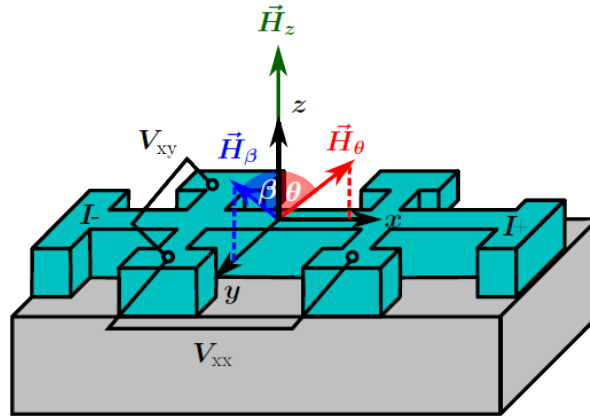


Abb. 5.29.: Definition der verwendeten Drehwinkel θ und β für die winkelabhängigen Messungen des Hall-Effekts und des Magnetwiderstands. Der Strom I fließt entlang der x -Achse. Der Magnetwiderstand wird in x -Richtung und der Hallwiderstand in y -Richtung gemessen. Die Probennormale \vec{n} zeigt entlang der z -Richtung. Mit θ wird die Drehung des Magnetfelds \vec{H} in der xz -Ebene bezeichnet, mit β die Drehung in der yz -Ebene. Die out-of-plane Richtung \vec{H}_z entspricht dem Winkel $\theta = \beta = 0^\circ$. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

dagegen eine Drehung des Magnetfelds in der yz -Ebene. Hier gilt wieder, dass für $\beta = 0^\circ$ ($\vec{H}(\beta = 0^\circ) = \vec{H}_z$) das angelegte Magnetfeld senkrecht zur Probenoberfläche ist. Dagegen liegt die Feldorientierung bei einem Drehwinkel $\beta = 90^\circ$, d.h. $\vec{H}(\beta = 90^\circ) = \vec{H}_y$, in der Filmebene, schließt aber mit der Richtung des Stroms einen Winkel von 90° ein.

Motiviert sind die winkelabhängigen Messungen durch theoretische Betrachtungen von A. O. Leonov und I. Kézsmárki [223], in denen sie ein unterschiedliches Verhalten für Bloch-Skyrmionen im Vergleich zu Néel-Skyrmionen und Antiskyrmionen gefunden haben. Bloch-Skyrmionen, die in Bulkproben vorhanden sind, orientieren die Achse ihres Zentrums entlang der Richtung des angelegten Magnetfelds, d.h. die Skyrmionen drehen sich mit dem Magnetfeld. Die Größe der Skyrmionen wird dabei nicht durch das Magnetfeld verändert (siehe Abb. 5.30(a)). Dagegen drehen Néel-Skyrmionen und Antiskyrmionen (siehe Abb. 5.30(b) und (c)) die Achse ihres Zentrums nicht mit dem angelegten Magnetfeld, sondern be-

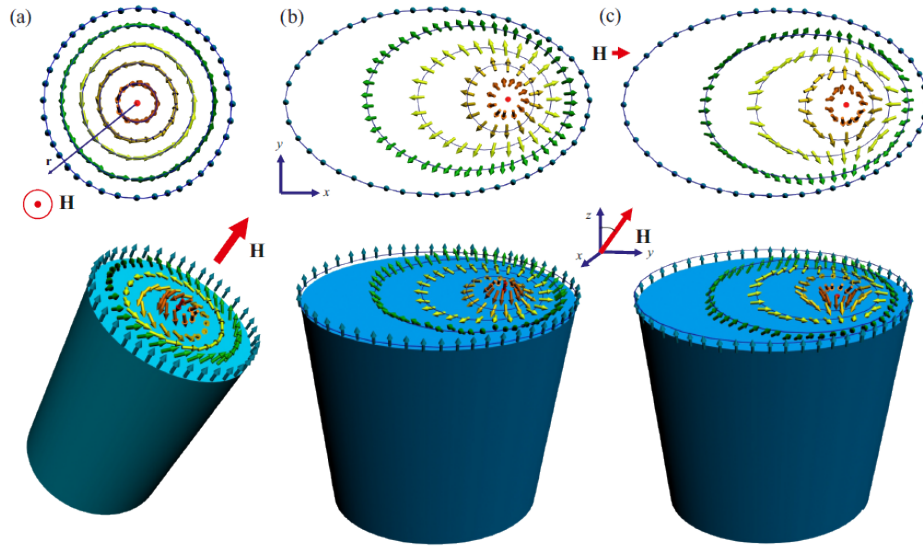


Abb. 5.30.: Einfluss eines aus der Probennormalen gedrehten Magnetfelds auf Skyrmionen. (a) Bloch-Skyrmionen drehen die Achse ihres Zentrums in Richtung des angelegten Magnetfelds. Ihre Größe bleibt dabei unverändert. Bei Néel-Skyrmionen (b) und bei Antiskyrmionen (c) zeigt die Achse des Zentrums auch bei gedrehten Felder in Richtung der Probennormalen bzw. der Grenzflächennormalen. Das gedrehte Magnetfeld führt zu einer Verzerrung der Skyrmionen in Richtung der in-plane Komponenten des Magnetfelds. Abbildung aus Phys. Rev. B **96**, A. O. Leonov und I. Kézsmárki, *Skyrmion robustness in noncentrosymmetric magnets with axial symmetry: The role of anisotropy and tilted magnetic fields*, Copyright (2017) [223], mit Erlaubnis der American Physical Society.

halten ihre ursprüngliche Orientierung in out-of-plane Richtung bei. Durch das gedrehte Magnetfeld ergibt sich eine Magnetfeldkomponente innerhalb der Filmebene, entlang der sich die Größe der Skyrmionen verzerren.

Winkelabhängiger Hall-Effekt

Abbildung 5.31 zeigt den winkelabhängigen Hall-Effekt für zwei Temperaturen $T = 10\text{ K}$ und $T = 60\text{ K}$ exemplarisch für die drei Drehwinkel $\theta_1 = 0^\circ$, $\theta_2 = 35^\circ$ und $\theta_3 = 55^\circ$. Man erkennt für beide Temperaturen einen ähnlichen Kurvenverlauf. Für $\theta_2 = 35^\circ$ und $\theta_3 = 55^\circ$ lassen sich bei 10 K die charakteristischen Signaturen im Hall-Effekt deutlicher erkennen. Aus diesem Grund wurden die folgenden winkelabhängigen Messungen bei $T = 10\text{ K}$ durchgeführt.

Wie bei den Messungen des temperaturabhängigen Hall-Effekts (siehe dazu Abschnitt 5.5.1) wurde der Beitrag des normalen Hall-Effekts durch lineare Regression im Hochfeld-Bereich ermittelt und anschließend vom gemessenen Widerstand abgezogen. Die ermittelten normalen Hallkonstanten R_0 sind in Abbildung 5.32(b) für beide Drehrichtungen dargestellt. Der Vergleich zwischen den beiden orthogonalen Drehrichtungen zeigt für R_0 ein ähnliches Verhalten in der winkelabhängigen Änderung und lässt darauf schließen, dass sich der normale Hall-Effekt ρ_{OHE} in beiden Richtungen gleich verhält. Das negative Vorzeichen von R_0 zeigt den elektronenartigen Charakter der Ladungsträger. Wird das Magnetfeld aus der Probennormalen (z -Achse) in Richtung Filmebene (xy -Ebene) gedreht, geht die normale Hallkonstante gegen null.

Der Vergleich zwischen der $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur und einem reinen SrRuO_3 Film zeigt einen ähnlichen Verlauf für R_0 . Für Drehwinkel zwischen 0° und 45° ist die normale Hallkonstante für die Heterostruktur betragsmä-

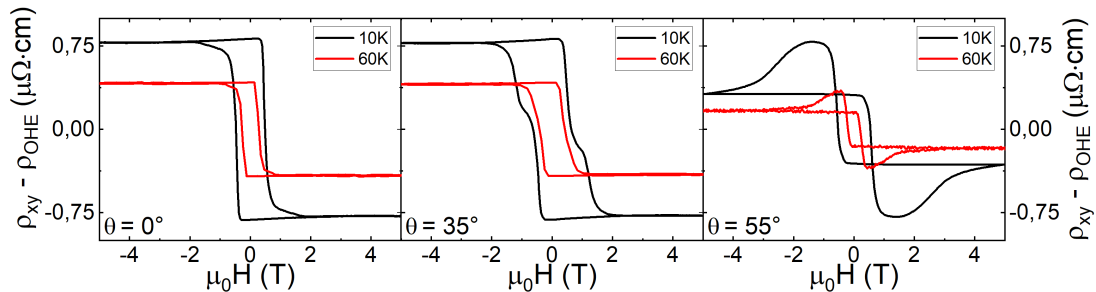


Abb. 5.31.: Vergleich des winkelabhängigen Hall-Effekts für $T = 10\text{ K}$ (schwarz) und $T = 60\text{ K}$ (rot). Für beide Temperaturen zeigt sich dieselbe Winkelabhängigkeit.

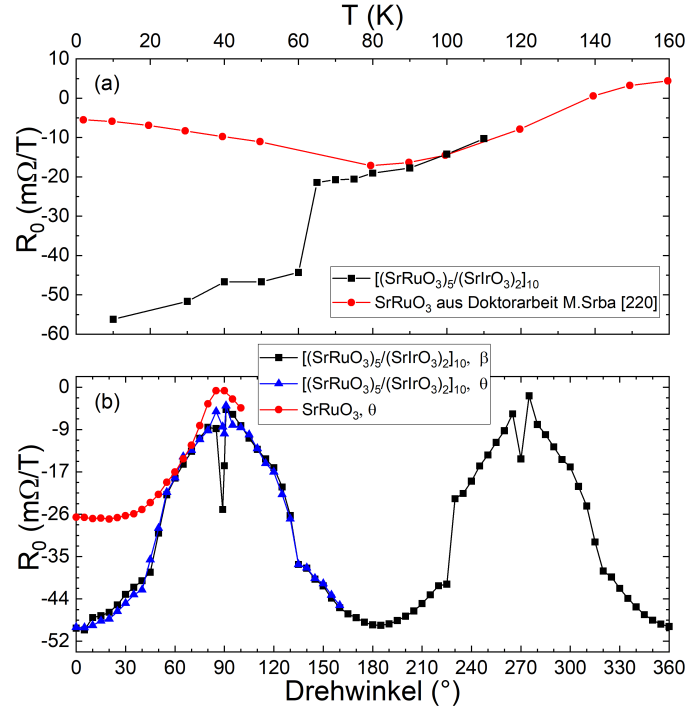


Abb. 5.32.: (a) Temperaturabhängigkeit der normalen Hallkonstanten R_0 einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur im Vergleich einer reinen SrRuO_3 Dünnschicht. Die Daten der SrRuO_3 Probe stammen aus [220].
 (b) Winkelabhängigkeit der normalen Hallkonstanten R_0 der $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur für die beiden Drehrichtungen θ und β , sowie für eine reine SrRuO_3 Schicht mit der Drehung entlang θ . Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

fig größer. Im Winkelbereich von 55° bis 90° nähert sich R_0 der Heterostruktur dem Wert im reinen SrRuO_3 an.

Die Differenz $\rho_{xy} - \rho_{\text{OHE}}$ zeigt für die beiden Drehrichtungen für Drehwinkel $\beta \neq 90^\circ$ und $\theta \neq 90^\circ$ unter demselben Winkel eine ähnliche Kurvenform. Anhand der Kurvenform kann der Winkelbereich von 0° bis 90° in vier Bereiche gegliedert werden.

Im Winkelbereich von 0° bis 20° zeigt sich sowohl in der Breite der Hysterese als auch in seiner Größe im Hochfeld-Bereich keine Änderung. Der Hall-Effekt ist konstant. Für Drehwinkel zwischen 25° und 40° bleibt der Widerstand im Hochfeld-Bereich weiterhin konstant, aber innerhalb der Hysterese bildet sich eine Stufe aus, die mit anwachsendem Winkel deutlicher wird.

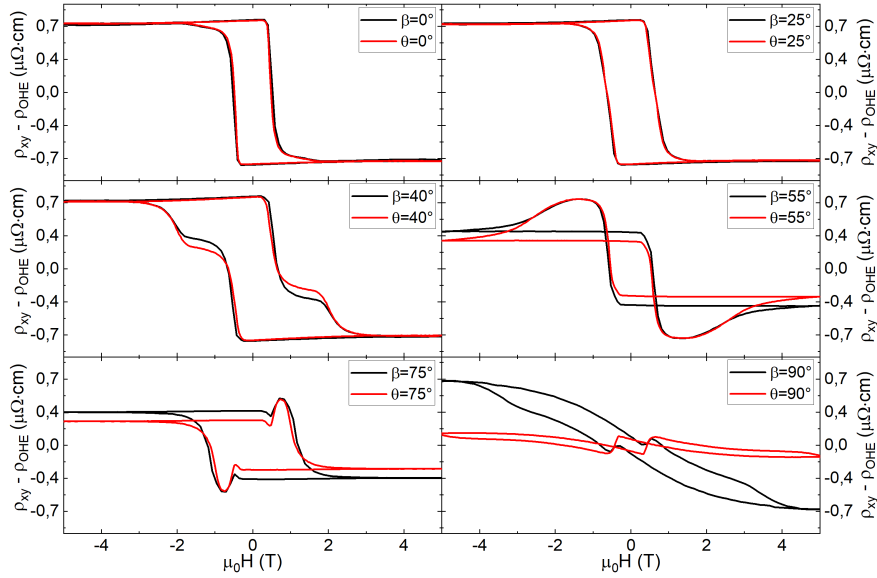


Abb. 5.33.: Winkelabhängiger Hall-Effekt für Drehungen des Magnetfelds senkrecht (Drehwinkel β in schwarz) und parallel (Drehwinkel θ in rot) zum angelegten Strom I bei 10 K.

Bei einem Drehwinkel von 50° ist die Stufe in der Hysterese verschwunden. Die Breite der Hysterese entspricht derjenigen eines out-of-plane orientierten Magnetfelds (Drehwinkel 0°). Der Widerstand im Hochfeld-Bereich ist im Vergleich zum Winkelbereich 0° bis 40° reduziert. Dafür kann vom Hochfeld-Bereich kommend (± 5 T) bis zum Einsetzen der Hysterese eine Zunahme des Hall-Widerstands beobachtet werden. Für Magnetfelder oberhalb der Hysterese ist der Hall-Widerstand konstant. Für Werte des Drehwinkels von 50° nach 65° wird der Widerstand bei ± 5 T kleiner. Ebenso wird die Zunahme zwischen ± 5 T und der einsetzenden Hysterese kleiner und verschwindet bei 70° . Im Drehwinkelbereich von 70° bis 85° bleibt der Widerstand bei ± 5 T wieder konstant. In der Hysterese lässt sich kurz vor dem Koerzitivfeld eine zusätzliche Spitze im Hall-Effekt beobachten. Diese wird mit zunehmendem Drehwinkel größer. Der Hall-Effekt bei 45° stellt eine Übergangsform zwischen 40° und 50° dar. Für Magnetfeldorientierungen parallel zur Filmebene (Drehwinkel 90°) zeigt sich ein unterschiedliches Verhalten zwischen den beiden Drehrichtungen. Bei $\beta = 90^\circ$ ist der Widerstand bei 5 T ähnlich zu dem bei $\beta = 0^\circ$. Dagegen zeigt sich im Hall-Effekt für $\theta = 90^\circ$ ein sehr geringer Widerstand. In Abbildung 5.33 sind exemplarisch für die beiden Drehrichtungen die Differenz $\rho_{xy} - \rho_{\text{OHE}}$ bei verschiedenen Drehwinkeln aufgetragen.

Die Kurvenform des Hall-Effekts bei beispielsweise $\theta = 40^\circ$ (Stufe in der Hysterese) oder bei $\theta = 55^\circ$ (Zunahme des Widerstands vom Hochfeld-Bereich bis

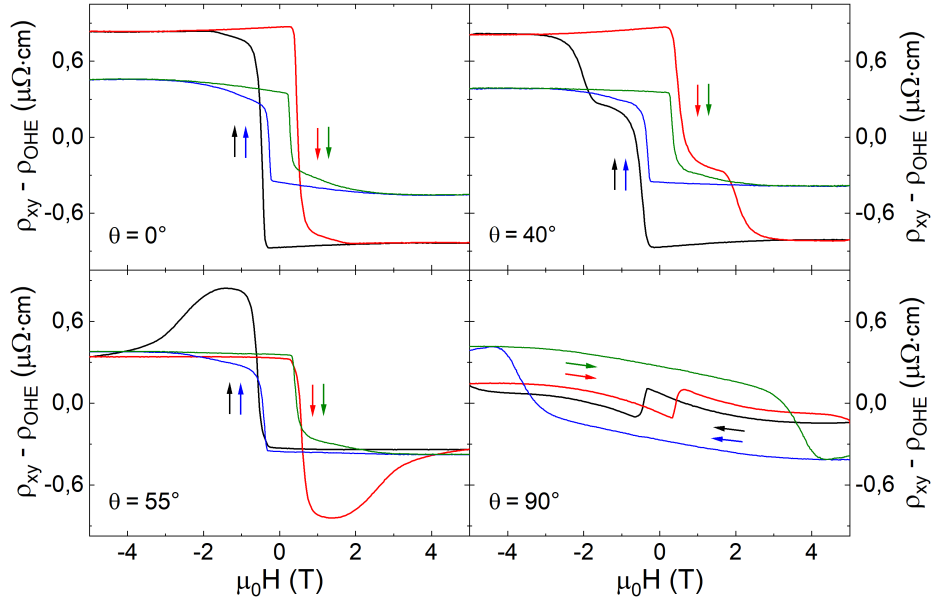


Abb. 5.34.: Vergleich des winkelabhängigen Hall-Effekts für Drehungen des Magnetfelds in der xz -Ebene (Drehwinkel θ) für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur (schwarz und rot) und reinen SrRuO_3 (blau und grün). Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

zum Einsetzen der Hysterese) lässt sich in den winkelabhängigen Messungen des Hall-Effekts von reinem SrRuO_3 nicht beobachten (siehe Abb. 5.34). Dies lässt den Schluss zu, dass diese Effekte durch die Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 hervorgerufen wird.

Der Beitrag des anomalen Hall-Effekts kann mittels Gleichung (5.1) beschrieben werden. In Abbildung 5.35 sind der experimentell bestimmte Hall-Effekt und der mit dem 2-Kanal Modell erhaltene Beitrag des anomalen Hall-Effekts für vier Drehwinkel β dargestellt. Für Drehungen des Magnetfelds in der xz -Ebene (Drehwinkel θ) ergeben sich ähnliche Resultate.

Mit den Einzelbeiträgen ρ_{s1} und ρ_{s2} lassen sich die zuvor beschriebenen charakteristischen Kurvenformen gut erklären. Haben ρ_{s1} und ρ_{s2} dasselbe Vorzeichen, wie beispielsweise für $\beta = 35^\circ$ (Abbildung 5.36(c)), ergibt sich im anomalen Hall-Effekt eine stufenartige Struktur (Abbildung 5.36(a)). Haben die Einzelbeiträge jedoch wie bei $\beta = 55^\circ$ unterschiedliche Vorzeichen (siehe Abbildung 5.36(d)) zeigt sich in ρ_{AHE} die Zunahme zwischen ± 5 T und der einsetzenden Hysterese.

Für Drehungen des Magnetfelds in der yz -Ebene (Drehwinkel β) wurde über den gesamten Winkelbereich $0^\circ \leq \beta \leq 360^\circ$ die Differenz $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zwischen Mes-

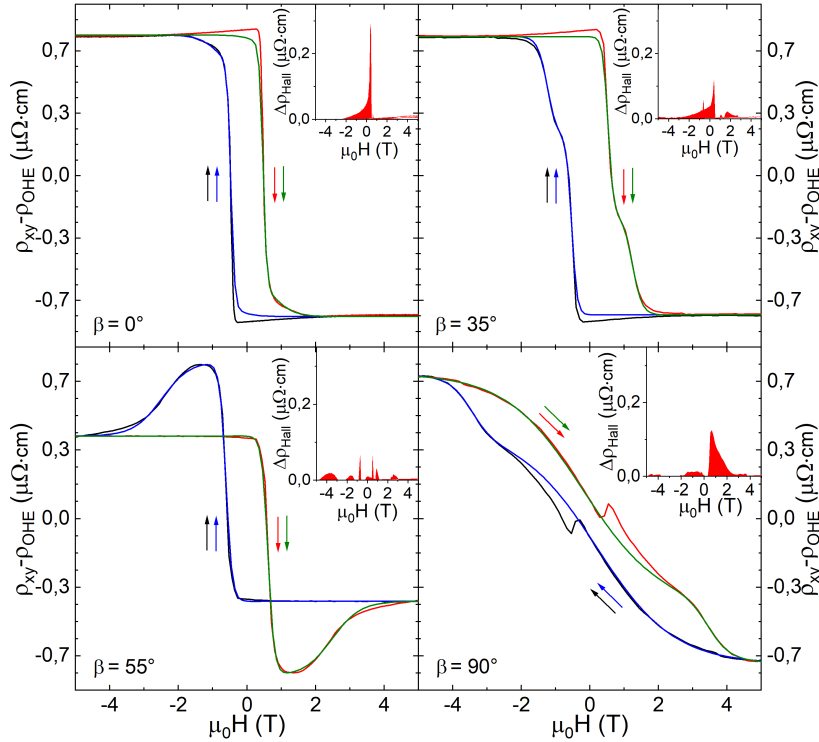


Abb. 5.35.: Anpassung des 2-Kanal Modells zur Beschreibung des anomalen Hall-Effekts (blau und grün) im experimentell bestimmten Hall-Effekt (schwarz und rot) für die vier Drehwinkel $\beta = 0^\circ$, $\beta = 35^\circ$, $\beta = 55^\circ$ und $\beta = 90^\circ$. Die jeweiligen Insets zeigen die Differenz $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zwischen Experiment und Modell für die Feldänderung von -5 T nach 5 T . Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

sung und dem 2-Kanal Modell gebildet. Die Interpretation der Winkelabhängigkeit ist durch die Arbeit von Yokouchi *et al.* [224] über die winkelabhängige Größe von Bloch-Skyrmionen in Dünnschichten aus $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ motiviert. Sie fanden für Schichtdicken d kleiner als die Helixlänge λ_{Helix} stabile Skyrmionen. Ist d jedoch größer als die Helixlänge werden nicht koplanare magnetischen Spinstrukturen wie beispielsweise Skyrmionen instabil.

Wenn das Magnetfeld einen Winkel von 20° zur Probenoberfläche aufweist ($\beta = 70^\circ$) lässt sich im Hall-Effekt eine ungewöhnliche peakartige Struktur beobachten, die nicht durch das verwendete 2-Kanal Modell für den anomalen Hall Effekt beschrieben werden kann. Wie in Abbildung 5.37 zu erkennen ist, tritt diese zusätzliche Struktur im Winkelbereich $70^\circ \leq \beta \leq 90^\circ$, also auch für in-plane orientierte Magnetfelder, auf.

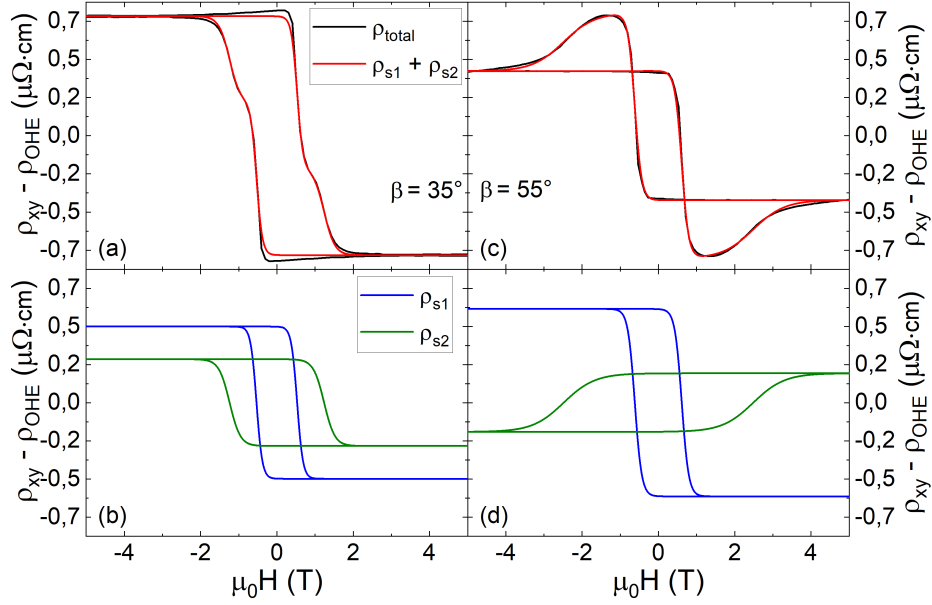


Abb. 5.36.: Modellierung des gemessenen Hall-Effekts ρ_{Messung} (schwarz) mit dem 2-Kanal anomalen Hall Effekts $\rho_{\text{AHE}} = \rho_{s1} + \rho_{s2}$ (rot) für (a) $\beta = 35^\circ$ und (b) $\beta = 55^\circ$. (c) Bei $\beta = 35^\circ$ haben die Einzelbeiträge ρ_{s1} (blau) und ρ_{s2} (grün) das gleiche Vorzeichen, wohingegen bei (d) $\beta = 55^\circ$ ρ_{s1} und ρ_{s2} unterschiedliche Vorzeichen haben.

Vergleicht man die feldabhängigen Verläufe für eher out-of-plane (Abb. 5.38(a)), sowie für eher in-plane orientierte Magnetfelder (Abb. 5.38(b)) zeigt sich, dass der zusätzliche Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ sein Maximum bei einem ähnlichen Magnetfeld H_{sk} besitzt.

Ausgehend von einem out-of-plane orientierten Magnetfeld ($\beta = 0^\circ$) nimmt das Maximum von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bis zu einer Drehung um $\beta_{c,1} = 45^\circ$ ab. Identifiziert man $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ mit dem topologischen Hall-Effekt ρ_{THE} , hängt nach Gleichung (2.10) die Abnahme von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ mit einer Vergrößerung der Skyrmionen zusammen. Schätzt man die Größe r_{sk} über die Beziehung $r_{\text{sk}} \approx 1/\sqrt{n_{\text{sk}}}$ ab sowie unter Berücksichtigung der Verzerrung durch die in-plane Komponente des Magnetfelds, so ergibt sich im Winkelbereich zwischen 0° und 45° eine konstante Skyrmionengröße von $r_{\text{sk}}/|\cos\beta| \approx 20 \text{ nm}$. Das gleiche Verhalten von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ kann auf dem gesamten Winkelbereich ebenfalls zwischen $\beta_{c,2} = 140^\circ$ und $\beta_{c,3} = 225^\circ$, sowie zwischen $\beta_{c,4} = 310^\circ$ und 360° beobachtet werden. Für Feldorientierung zwischen diesen kritischen Winkeln können Skyrmionen für den zusätzlichen Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ verantwortlich sein.

Zwischen den Winkeln $\beta_{i,1} = 70^\circ$ und $\beta_{i,2} = 110^\circ$, sowie $\beta_{i,3} = 250^\circ$ und $\beta_{i,4} = 290^\circ$ lässt sich dagegen das Auftreten der zuvor beschriebenen peakartigen

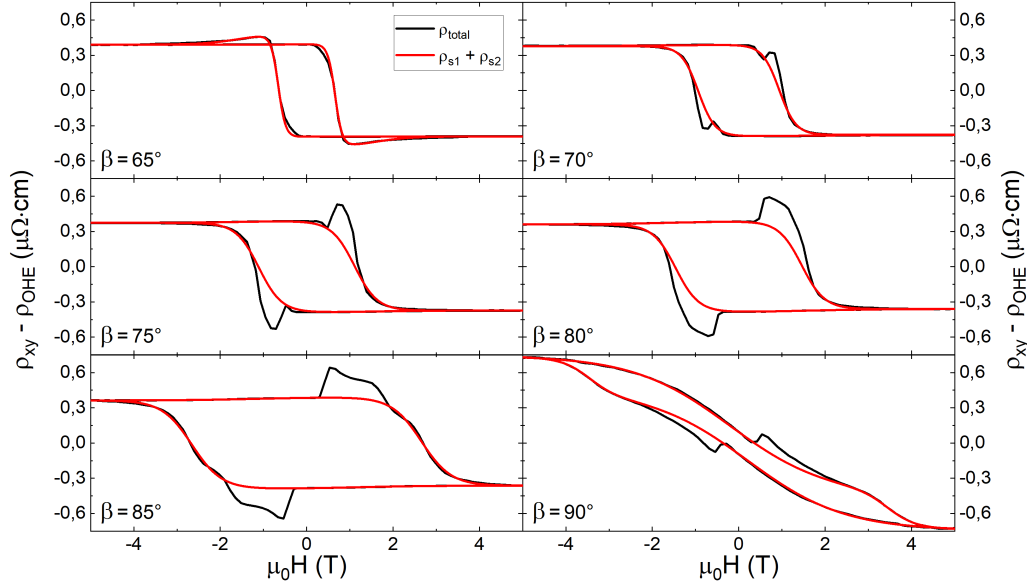


Abb. 5.37.: Modellierung des gemessenen Hall-Effekts ρ_{Messung} (schwarz) mit dem 2-Kanal anomalen Hall Effekts $\rho_{\text{AHE}} = \rho_{s1} + \rho_{s2}$ für sechs unterschiedliche Feldorientierungen β nahe einer Ausrichtung parallel zur Probenoberfläche. Während bei $\beta = 65^\circ$ der Kurvenverlauf sehr gut mit dem verwendeten Modell beschrieben werden kann tritt zwischen $\beta = 70^\circ$ (b) und $\beta = 90^\circ$ (f) eine deutliche peakartige Struktur auf, die nicht durch das Modell beschrieben wird. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Struktur beobachten. Wegen der in-plane Orientierung des Magnetfelds wird dieser Beitrag nicht durch herkömmliche Néel-Skyrmionen hervorgerufen und kann ein möglicher Hinweis auf die in Kapitel 2.3.2 vorgestellten Bimeronen [67, 225] darstellen.

In den Bereichen $\beta_{c,1} < \beta < \beta_{i,1}$, $\beta_{i,2} < \beta < \beta_{c,2}$, $\beta_{c,3} < \beta < \beta_{i,3}$ und $\beta_{i,4} < \beta < \beta_{c,4}$ werden zum einen die Néel-Skyrmionen durch die in-plane Komponente $H_{\text{in-plane}}$ des Magnetfelds so stark verzerrt, dass sie instabil werden. Zum anderen ist $H_{\text{in-plane}}$ noch nicht groß genug, dass sich die möglichen Bimeronen bilden. Damit kann auch erklärt werden, warum der gemessene Hall-Effekt für Drehwinkel in diesen Bereichen, zum Beispiel bei $\beta = 55^\circ$, in guter Übereinstimmung mit dem 2-Kanal Modell des anomalen Hall-Effekts beschrieben werden kann, wogegen für Winkel außerhalb dieser Intervalle, beispielsweise $\beta = 0^\circ$, eine deutliche Differenz $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zwischen Messung und Modell sichtbar ist. Im ersten Fall sind keine Skyrmionen vorhanden, und daher kann im Hall-Effekt kein von ihnen hervorgerufener topologischer Hall-Effekt beobachtet werden. Dagegen beschreibt

der zweite Fall mit den Winkelbereichen $\beta_{c,4} < \beta < \beta_{c,1}$ und $\beta_{c,2} < \beta < \beta_{c,3}$ Regionen, in denen sich stabile Néel-Skyrmionen ausbilden und einen Beitrag zum Hall-Effekt liefern. In den Intervallen $\beta_{i,1} < \beta < \beta_{i,2}$ und $\beta_{i,3} < \beta < \beta_{i,4}$ weist der zusätzliche Beitrag im Hall-Effekt auf eine Änderung der magnetischen Ordnungsstruktur hin, was auf die mögliche Bildung von Bimeronen hinweisen kann.

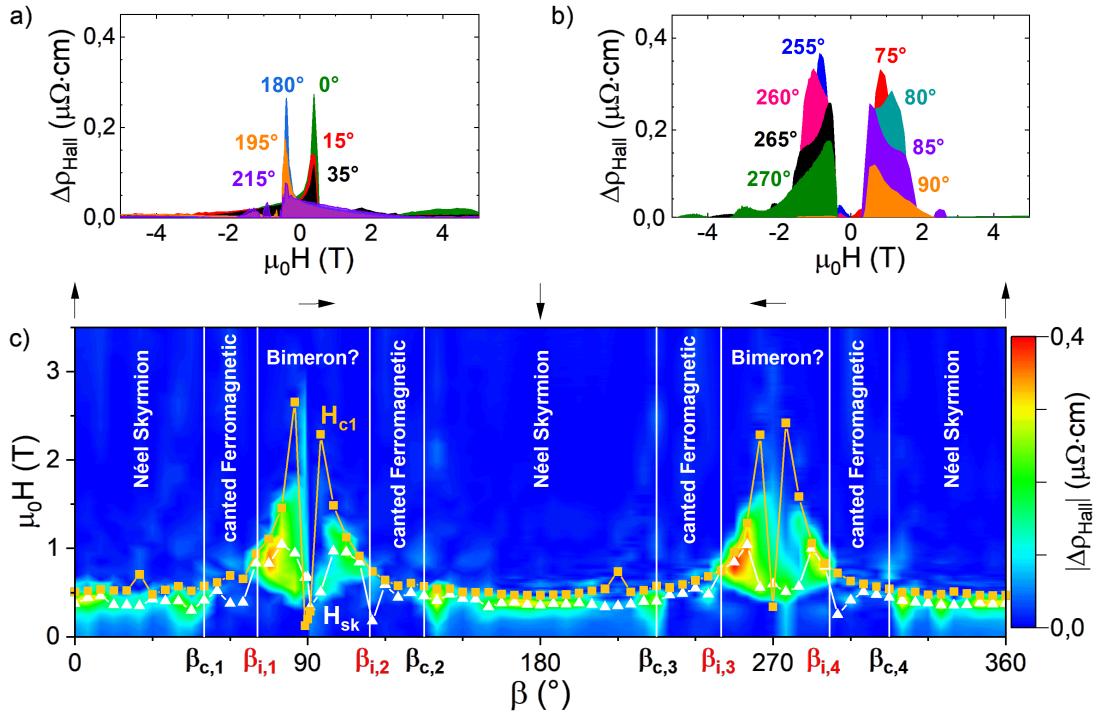


Abb. 5.38.: Winkelabhängigkeit des zusätzlichen Hall Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei 10 K für Feldänderung von -5 T nach 5 T.

(a) Feldabhängiger Verlauf von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei Magnetfeldorientierungen für kleine Drehwinkel β aus der out-of-plane Richtung heraus.

(b) Feldabhängiger Verlauf von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei Magnetfeldorientierungen für Drehwinkel β Nahe der in-plane Richtung (90° oder 270°).

(c) Drehwinkel-Magnetfeld Phasendiagramm des zusätzlichen Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$. In Gelb ist der winkelabhängige Verlauf des Koerzitivfeldes H_{c1} und in weiß die Winkelabhängigkeit des Feldes H_{sk} (weiß), bei dem das Maximum von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zu beobachten ist, dargestellt. Deutlich können drei unterschiedliche Phasen unterschieden werden: (1) mögliche Néel-Skyrmionen, (2) gekanteter Ferromagnetismus und (3) mögliche Bimeronen. Die Orientierung des externen Magnetfelds ist mit den schwarzen Pfeilen oberhalb des Phasendiagramms dargestellt. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Winkelabhängiger Magnetwiderstand

Zunächst wurde der temperaturabhängige Magnetwiderstand bei einem Magnetfeld $\mu_0 H = 5 \text{ T}$ für ein senkrecht zur Probenoberfläche orientiertes Magnetfeld ($\theta = 0^\circ$) und für ein in der Filmebene parallel zum Strom liegendes Magnetfeld ($\theta = 90^\circ$) untersucht. In beiden Feldorientierungen (siehe Abbildung 5.39) lässt sich die magnetische Ordnung durch ein Minimum bei der gleichen Temperatur beobachten. Oberhalb dieser Temperatur unterscheidet sich der Widerstand mit angelegtem Magnetfeld nicht vom feldfreien Fall. Mit abnehmender Temperatur wird der Magnetwiderstand größer. Im Fall des in-plane orientierten Magnetfelds führt dies dazu, dass der Magnetwiderstand $(\Delta\rho_{xx}/\rho_0)_{\text{ip}}$ vom Minimum ausgehend gegen Null strebt. Bei dem out-of-plane angelegten Magnetfeld vollzieht der Magnetwiderstand $(\Delta\rho_{xx}/\rho_0)_{\text{oop}}$ sogar einen Übergang von einem kleineren Widerstand im Magnetfeld (negativer MR) zu einem größeren Widerstand im Magnetfeld (positiver MR) bei $T = 60 \text{ K}$.

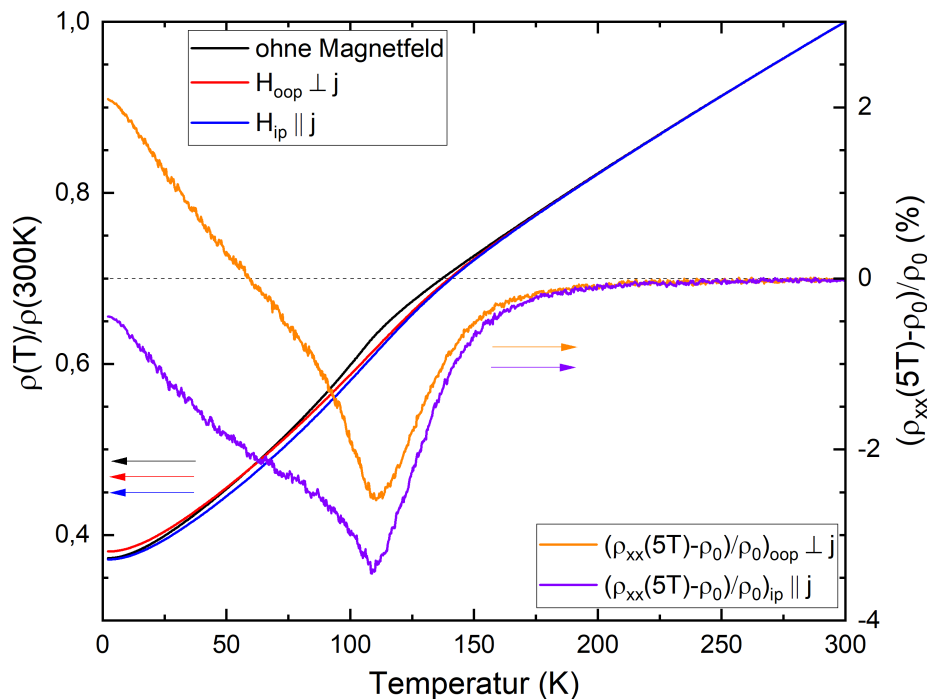


Abb. 5.39.: Temperaturabhängiger Widerstandsverlauf ohne Magnetfeld (schwarz), für ein Magnetfeld $\mu_0 H_z = 5 \text{ T}$ (rot) senkrecht zur Stromdichte j und für ein Magnetfeld $\mu_0 H_x = 5 \text{ T}$ (blau) parallel zur Stromdichte j . In Orange ist der temperaturabhängige out-of-plane Magnetwiderstand $(\Delta\rho_{xx}/\rho_0)_{\text{oop}}$ senkrecht zu j und violett der in-plane Magnetwiderstand $(\Delta\rho_{xx}/\rho_0)_{\text{ip}}$ parallel zu j dargestellt.

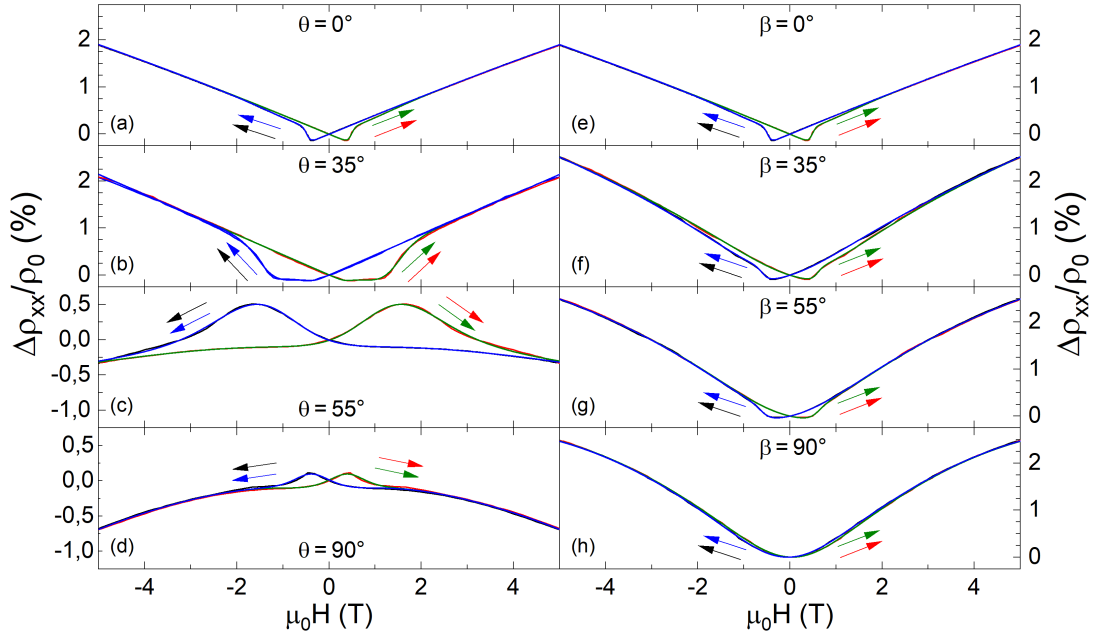


Abb. 5.40.: Winkelabhängiger Magnetwiderstand bei $T = 10$ K für Drehungen des Magnetfelds in der xz -Ebene um den Winkel (a) $\theta = 0^\circ$, (b) $\theta = 35^\circ$, (c) $\theta = 55^\circ$ und (d) $\theta = 90^\circ$, sowie in der yz -Ebene um den Winkel (e) $\beta = 0^\circ$, (f) $\beta = 35^\circ$, (g) $\beta = 55^\circ$ und (h) $\beta = 90^\circ$. Schwarz und rot ist der experimentell bestimmte Magnetwiderstand dargestellt und in blau und grün die Anpassung mit dem aufgestellten 2-Kanal Modell. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Anschließend wurde, vergleichbar zu den Messungen der Winkelabhängigkeit des Hall-Effekts, bei 10 K der Magnetwiderstand für Drehungen innerhalb der xz - und der yz -Ebene gemessen. In den Messungen lassen sich dabei drei Symmetrieachsen erkennen, die entlang der in Abbildung 5.29 verwendeten kartesischen Koordinatenachsen zeigen. Der Verlauf des Magnetwiderstands zeigt einen deutlichen Unterschied zwischen den beiden Drehrichtungen. Bei der Drehung des Magnetfelds in der xz -Ebene, also parallel zum Strom I , nimmt der Magnetwiderstand im Intervall $0^\circ \leq \theta \leq 40^\circ$ zu. Außerdem lässt sich im Bereich kleiner Felder eine Verbreiterung der auftretenden Hysterese beobachten. Wird das Magnetfeld weiter in Richtung der Filmebene gedreht ($50^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$) nimmt der magnetfeldabhängige Widerstand ab, was zu einem negativen Magnetwiderstand führt. Liegt das Feld in der Filmebene parallel zum Strom ist der Magnetwiderstand am kleinsten, d.h. es gilt: $(\Delta\rho_{xx}/\rho_0)_{\theta=90^\circ} < (\Delta\rho_{xx}/\rho_0)_{\theta \neq 90^\circ}$.

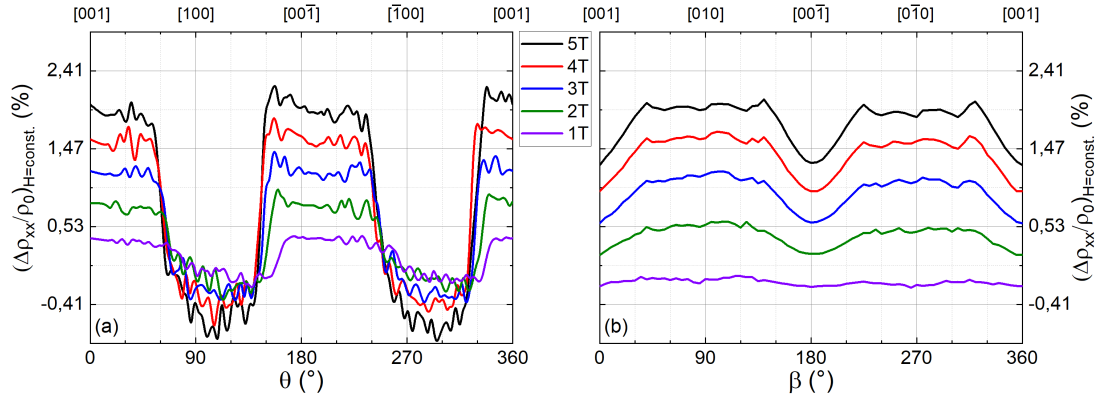


Abb. 5.41.: Winkelabhängiger Magnetwiderstand bei konstanten Magnetfeldern nach Ausrichtung der Magnetisierung in einem Magnetfeld von 5 T.
 (a) Winkelabhängiger Magnetwiderstand für die Drehung in der xz -Ebene parallel zum Stromfluss.
 (b) Winkelabhängiger Magnetwiderstand für die Drehung in der yz -Ebene senkrecht zum Stromfluss.

Wird das Magnetfeld stattdessen in der yz -Ebene senkrecht zum Strom I gedreht, so wird der Magnetwiderstand für Drehwinkel $0^\circ \leq \beta \leq 45^\circ$ größer. Die auftretende Hysterese im Bereich kleiner Felder bleibt jedoch unverändert. Im Intervall $50^\circ \leq \beta \leq 90^\circ$ bleibt die Größe des Magnetwiderstands konstant. Die Hysterese wird dagegen kleiner bis sie für $\beta = 90^\circ$ verschwunden ist.

Abbildung 5.40 zeigt exemplarisch für dieselben Werte der Drehwinkel (β und θ) den feldabhängigen Verlauf des Magnetwiderstands. Der winkelabhängige Kurvenverlauf des Magnetwiderstands konnte mit dem aufgesetzten 2-Kanal Modell (Gleichung (5.2)) für beide Drehrichtungen gut modelliert werden. Vergleicht man die Winkelabhängigkeit des Magnetwiderstands $\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}$ für Drehungen in der xz - (Drehwinkel θ) und in der yz -Ebene (Drehwinkel β) (siehe Abb. 5.41), zeigt sich nach dem Ausrichten der Magnetisierung in einem externen Feld $\mu_0 H = 5$ T für die beiden Drehrichtungen ein unterschiedliches Verhalten.

Dabei wird davon ausgegangen, dass die Magnetisierungsrichtung \vec{m} bei einer Feldstärke von 5 T parallel zur Feldrichtung ist ($\vec{m} \parallel \vec{H}$). Für Drehungen in der yz -Ebene ist der MR für Magnetfelder $\mu_0 H \geq 2$ T positiv, wogegen er in der xz -Ebene bei allen angelegten Feldern mit in-plane Orientierung negativ ist. In beiden Drehrichtungen zeigt sich für Feldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche ($\beta = \theta = 0^\circ$ und $\beta = \theta = 180^\circ$) ein (lokales) Minimum, das mit größerem angelegten Magnetfeld deutlicher wird. Bei Orientierungen des Magnetfelds parallel zur Probenoberfläche (90° und 270°) ist für Drehungen senkrecht

zum Stromfluss der Magnetwiderstand konstant und für Drehungen in Richtung des Stromfluss lässt sich ein globales Minimum beobachten.

Aus der Winkelabhängigkeit ρ_{xy} des Hall-Widerstands (Querwiderstand ρ_{xy}) für Drehungen in der yz -Ebene lässt sich durch die Breite der Kurve (vgl. dazu die winkelabhängigen Messungen des Magnetotransport an GaMnAs in [94]) auf eine leichte magnetische Achse senkrecht zur Probenoberfläche schließen (siehe Abb. 5.42). Aus der Winkelabhängigkeit des Magnetwiderstands zeigt sich entlang der x -Achse ([100]-Richtung) und der z -Achse ([001]-Richtung) ein kleinerer Magnetwiderstand als für Magnetfelder entlang der y -Achse ([010]-Richtung). Deutlich lässt sich eine zweizählige Symmetrie in beiden Drehrichtungen erkennen.

Bei der Variation von β ändert sich der auftretende Magnetwiderstand $\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}$ lediglich um etwa $\sim 0,7\%$. Dies ist in Abbildung 5.43(b) dargestellt. Für Magnetfeldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche ($H \parallel [001]$) und in der Filmebene senkrecht zum Stromfluss ($H \parallel [010]$) ist folglich die magnetische Anisotropie auch etwa gleich groß. Da eine leichte magnetische Achse gemäß der Magnetisierungsmessung (siehe Abschnitt 5.4) entlang der [001]-Richtung orientiert ist, sollte eine zweite leichte Achse parallel zur [010]-Achse orientiert sein.

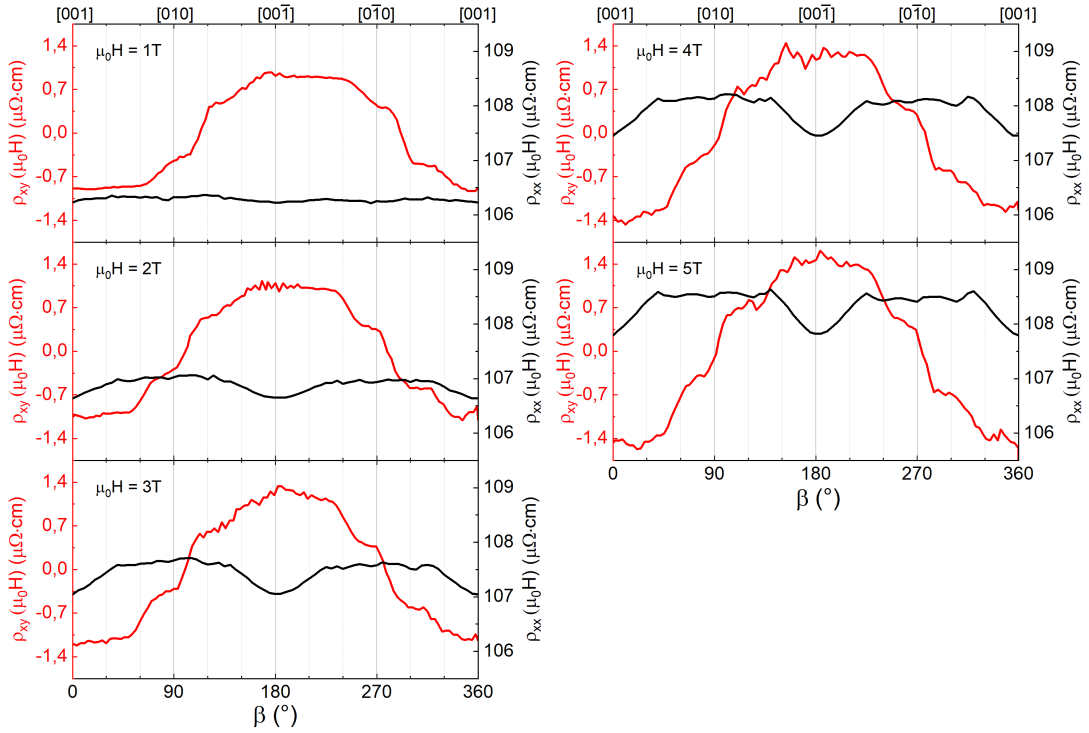


Abb. 5.42.: Winkelabhängiger Magnetwiderstand ρ_{xx} (schwarz) und Hall-Widerstand ρ_{xy} (rot) für Drehungen in der yz -Ebene senkrecht zum Strom im konstanten Magnetfeld.

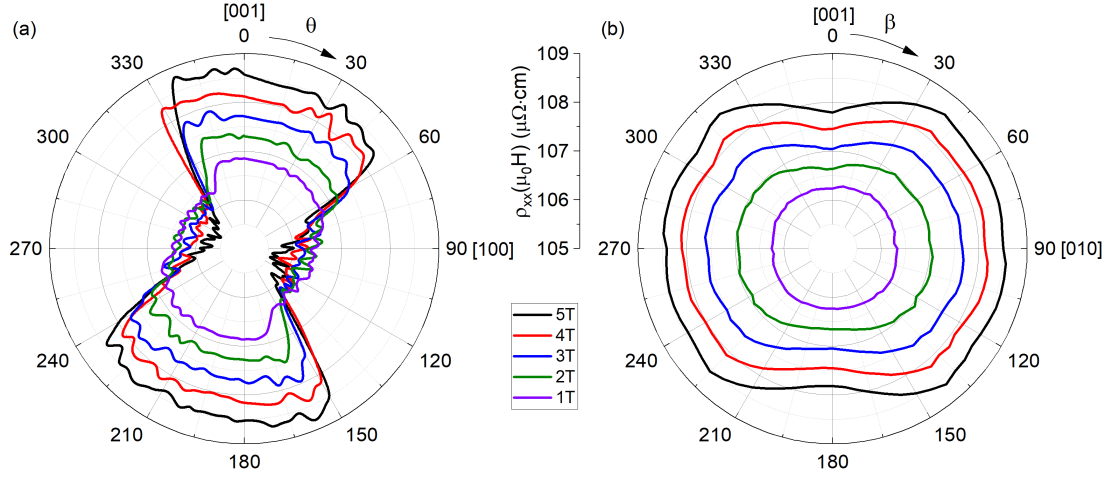


Abb. 5.43.: Polardiagramm des winkelabhängigen Magnetwiderstand ρ_{xx} bei konstanten Magnetfeldern nach Ausrichtung der Magnetisierung in einem Magnetfeld von 5 T.
 (a) Drehung in der xz -Ebene parallel zum Stromfluss.
 (b) Drehung in der yz -Ebene senkrecht zum Stromfluss.

Dagegen zeigt sich bei der Variation von θ (Abb. 5.43(a)) eine deutliche Änderung des Magnetwiderstand $\frac{\Delta\rho_{xx}}{\rho_0}$ zwischen $H \parallel [001]$ ($\theta = 0^\circ$) und $H \parallel [100]$ ($\theta = 90^\circ$). Dies lässt auf eine unterschiedliche Anisotropie in diesen beiden Richtungen schließen. Die leichte Achse scheint dabei um etwa 15° aus der $[001]$ -Richtung gedreht zu sein.

Um dies zu überprüfen wurden die Winkelabhängigkeiten mit Gleichung (2.12) angepasst. Dabei gilt:

$$\begin{aligned}\rho_{xx}(\theta) &= \rho_0(0^\circ) + \rho_1(0^\circ) \cos^2(\theta - \alpha_s) + \rho_2(0^\circ) \cos^4(\theta - \alpha_s) \\ \rho_{xx}(\beta) &= \rho_0(90^\circ) + \rho_1(90^\circ) \cos^2(\beta - \alpha_s) + \rho_2(90^\circ) \cos^4(\beta - \alpha_s)\end{aligned}$$

wobei eine mögliche Drehung der leichten Magnetisierungsachse aus der out-of-plane Richtung über den Winkel α_s berücksichtigt wird. In Abbildung 5.44(a) und 5.44(b) sind für beide Drehrichtungen die experimentell gefundene und die modellierte Winkelabhängigkeit des Widerstands zu sehen. Der Kurvenverlauf lässt sich mittels Gleichung (2.12) sehr gut in beiden Drehrichtungen beschreiben. Ebenso konnte die Winkelabhängigkeit von ρ_{xy} mittels Gleichung (2.13) (siehe Abb. 5.44(c)) modelliert. Hierbei lässt sich bei ρ_{xy} im Bereich kleiner Felder ($\mu_0 H = 1$ T) eine Verschiebung der Symmetrieachse aus der $[001]$ -Richtung um etwa 21° beobachten, die sich bei hohen Feldern ($\mu_0 H = 5$ T) parallel zur $[001]$ -

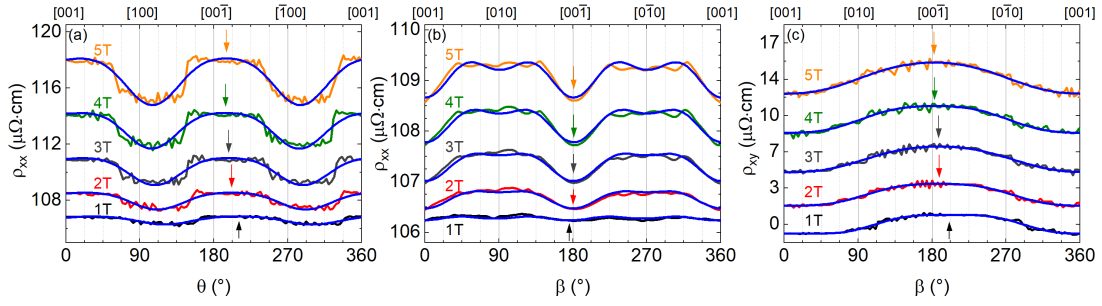


Abb. 5.44.: Anpassung des winkelabhängigen Magnetwiderstand ρ_{xx} und ρ_{xy} nach Ausrichtung der Magnetisierung in einem Magnetfeld von 5 T für Drehungen in der xz -Ebene und yz -Ebene. Die Anpassungsfunktion ist in blau dargestellt. Für eine bessere Übersicht sind die Kurven entlang der Ordinate gegeneinander verschoben.

(a) ρ_{xx} für Drehungen in der xz -Ebene parallel zum Strom.

(b) ρ_{xx} für Drehungen in der yz -Ebene senkrecht zum Strom.

(c) ρ_{xy} für Drehungen in der yz -Ebene senkrecht zum Strom. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Richtung dreht und vergleichbar zu der erhaltenen Symmetrieachse aus der Auswertung von ρ_{xx} ist.

Abbildung 5.45(d) zeigt den Vergleich der Drehung α_s aus der out-of-plane Richtung zwischen $\rho_{xx}(\theta)$, $\rho_{xx}(\beta)$ und $\rho_{xy}(\beta)$. Die Drehung bei $\rho_{xx}(\theta)$ und $\rho_{xy}(\beta)$ zeigt einen ähnlichen Verlauf mit einer größeren Drehung aus der Probennormalen

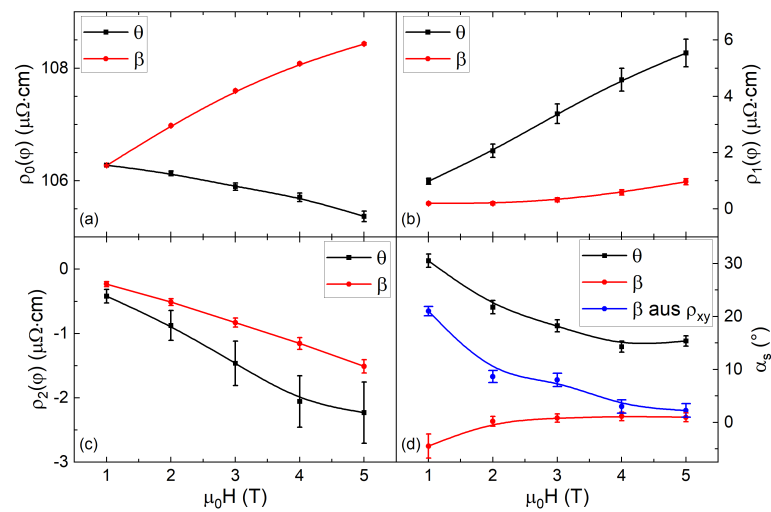


Abb. 5.45.: Feldabhängigkeit der ermittelten winkelabhängigen Fitparameter $\rho_0(\varphi)$ (a), $\rho_1(\varphi)$ (b) und $\rho_2(\varphi)$ (c), sowie des Drehwinkels α_s (d) aus der Probennormalen heraus.

Tab. 5.6.: Berechnung der Entwicklungskoeffizienten aus den winkelabhängigen Widerstandsparametern

Entwicklungskoeffizient	Widerstandsparameter
A	$\rho_0(90^\circ)$
E_1	$-\rho_0(0^\circ) - \rho_1(0^\circ) + \rho_0(90^\circ) - \rho_1(90^\circ)$
C_1	$2(\rho_0(0^\circ) - \rho_0(90^\circ)) + (\rho_1(0^\circ) + \rho_1(90^\circ))$
$E_2 + e_2$	$(\rho_2(0^\circ) - \rho_2(90^\circ)) + (\rho_0(0^\circ) + \rho_1(0^\circ)) - (\rho_0(90^\circ) - \rho_1(90^\circ))$
e_4	$\rho_2(0^\circ) + \rho_0(0^\circ) + \rho_1(0^\circ) - \rho_0(90^\circ) + \rho_1(90^\circ)$
c_3	$-(\rho_0(0^\circ) + \rho_1(0^\circ) + \rho_2(0^\circ)) + (2\rho_1(90^\circ) - \rho_0(90^\circ) + \rho_2(90^\circ))$
$B + b$	$\rho_4(90^\circ)$
$D + d_1$	$\rho_6(90^\circ)$

bei kleineren Feldern. Bei $\rho_{xx}(\beta)$ zeigt sich dagegen nur eine geringe Drehung um $\sim 1^\circ$. Ein Grund hierfür kann daran liegen, dass die winkelabhängige Änderung von $\rho_{xx}(\beta)$ vor allem bei kleinen Feldern nur sehr gering ist, und daher eine Drehung der Symmetrieachse nur schwer zu beobachten ist.

Die unterschiedlichen feldabhängigen Verläufe (siehe Abb. 5.45(a)-(c)) der Widerstandsparameter $\rho_j(\varphi)$ mit $j = 0,1,2$ für die beiden orthogonal zueinander

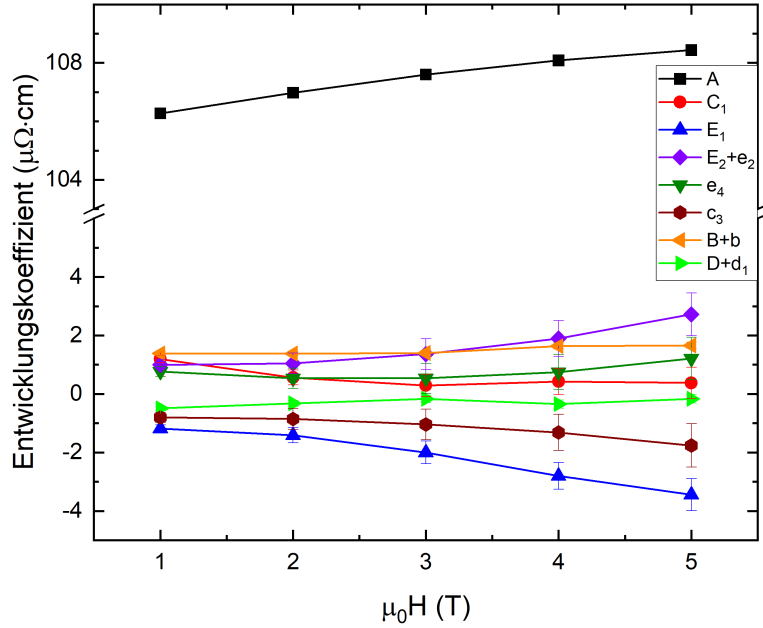


Abb. 5.46.: Feldabhängigkeit der Entwicklungskoeffizienten, die nach Tabelle 5.6 aus den Fitparametern des winkelabhängigen Widerstands berechnet wurden.

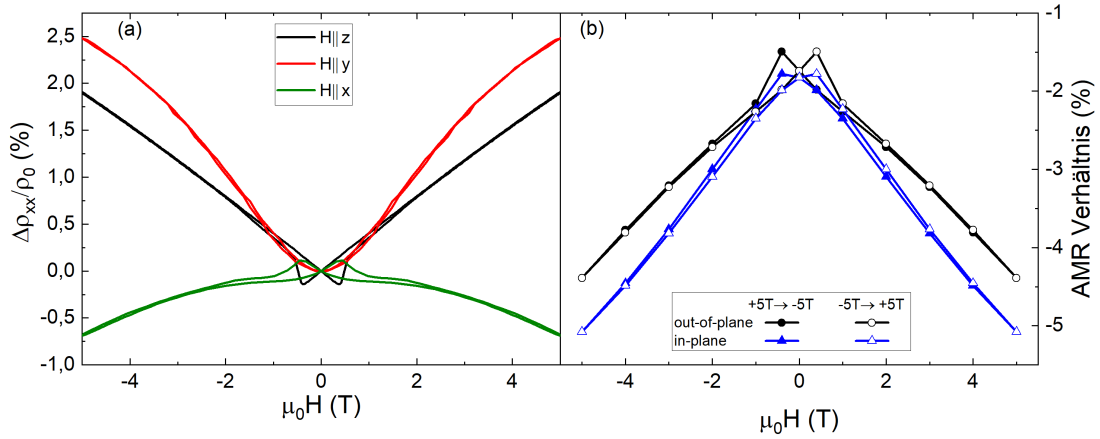


Abb. 5.47.: (a) Vergleich des Magnetwiderstands für Magnetfeldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche (schwarz), in der Filmebene senkrecht (rot) und parallel (grün) zum Strom. (b) Feldabhängigkeit des anisotropen Magnetwiderstands (AMR) für die in-plane (blau) und für die out-of-plane (schwarz) Richtung. Die Definition für den AMR wurde aus [91] übernommen. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

orientierten in-plane Magnetisierungsrichtungen ($\varphi = 0^\circ$ für Drehungen in der xz -Ebene und $\varphi = 90^\circ$ für Drehungen in der yz -Ebene) können durch die unterschiedlichen Linearkombinationen für die jeweilige in-plane Magnetisierung erklärt werden. Aus diesen können die Feldabhängigkeiten der Entwicklungskoeffizienten berechnet werden. In Tabelle 5.6 sind die verwendeten Linearkombinationen der Widerstandsparameter $\rho_j(\varphi)$ aufgelistet. Der berechnete Verlauf der Entwicklungskoeffizienten ist in Abbildung 5.46 dargestellt. *A* zeigt nur eine geringe Änderung ($\leq 2\%$) bei angelegten Feldern. Bei den anderen Entwicklungskoeffizienten ist diese Feldabhängigkeit größer. Der Wert von E_1 bei 5 T ist im Vergleich zu dem Wert bei 1 T um circa 190% größer, wogegen C_1 bei denselben Feldwerten seine Größe um 68% verringert.

Aus den Widerständen $\rho_{xx}(\theta = 0^\circ)$, $\rho_{xx}(\theta = 90^\circ)$ und $\rho_{xx}(\beta = 90^\circ)$ lassen sich nach Limmer *et al.* [91] der anisotrope Magnetwiderstand (AMR) in-plane A_{ip} und out-of-plane A_{oop} folgendermaßen berechnen:

$$A_{\text{ip}} = \frac{\rho_{xx}(\theta = 90^\circ) - \rho_{xx}(\beta = 90^\circ)}{\rho_{xx}(\theta = 90^\circ)} \stackrel{\text{Gl. (2.12)}}{=} \frac{C_1 + E_1}{A + C_1 + E_1}$$

$$A_{\text{oop}} = \frac{\rho_{xx}(\theta = 90^\circ) - \rho_{xx}(\theta = 0^\circ)}{\rho_{xx}(\theta = 90^\circ)} \stackrel{\text{Gl. (2.12)}}{=} \frac{E_1 - (E_2 + e_2) - c_3 - e_4}{A + C_1 + E_1}$$

Wie in Abbildung 5.47(b) dargestellt ist, zeigen sowohl der anisotrope Magnetwiderstand A_{ip} für die in-plane Richtung und A_{oop} für die out-of-plane Orientierung ein ähnliches Verhalten mit einer Hysterese im niedrigen Feldbereich und einem negativen AMR bei höheren Feldern. Die leichten Unterschiede zwischen A_{ip} und A_{oop} resultieren aus dem geringen Unterschied der magnetischen Anisotropie zwischen der [001]- und der [010]-Richtung aufgrund der Verspannung der $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur durch das SrTiO_3 Substrat.

Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel sollen die im vorhergehenden Kapitel 5 dargestellten experimentellen Ergebnisse zusammengefasst und eingeordnet werden. Zunächst wird die Eignung der aufgebauten Depositionsanlage für das Dünnschichtwachstum der Perowskite als Einzelsysteme und als Heterostrukturen betrachtet. Anschließend wird der Einfluss eines Magnetfelds auf die elektrischen Transporteigenschaften betrachtet. Dabei wird bei den Hall-Daten besonders die Einordnung der Ergebnisse hinsichtlich einer möglichen Skyrmionenbildung berücksichtigt. Den Abschluss bildet ein Ausblick über weiterführende Messungen und Kooperationen, durch die das untersuchte Probensystem besser verstanden werden kann.

Dünnschichtsynthese mittels MAD

Motiviert wurden die Untersuchungen an $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ Heterostrukturen durch die Vorhersage von Matsuno *et al.* [17] einer möglichen Bildung von Néel-Skyrmionen an der Grenzfläche zwischen dem ferromagnetischen SrRuO_3 und dem Spin-Bahn gekoppelten SrIrO_3 . Für die Formation der Skyrmionen werden an die hergestellten Schichtsysteme hohe Anforderungen gestellt. So müssen die einzelnen Perowskite präzise mit einer Schichtdicke von wenigen Monolagen hergestellt werden. Zudem müssen die Grenzflächen zwischen ihnen eine geringe Rauigkeit aufweisen.

Mit der aufgebauten MAD-Anlage konnte das Wachstum der beiden Einzelperowskite (SrRuO_3 und SrIrO_3) mit $(001)_{\text{pc}}$ Orientierung mit glatten Oberflächen auf (001) orientiertem SrTiO_3 realisiert werden. In der installierten *in-situ* Wachstumskontrolle mittels Ellipsometrie konnten Schichtdicken im Bereich weniger Monolagen detektiert werden, die mit Röntgenreflektometrie verifiziert wer-

den konnten. In der Ellipsometrie von symmetrisch gestapelten $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Bilagen mit k Wiederholungen, also $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostrukturen, konnte gezeigt werden, dass ähnliche Lagen einen gleichen Signalverlauf zeigen. Damit stellt die MAD ein geeignetes Verfahren für die Herstellung von Bilagen und Multilagen aus SrRuO_3 und SrIrO_3 dar.

Aufnahmen von reziproken Raumkarten um verschiedene $(h03)$ und $(h04)$ Reflexe (siehe Abb. 5.10(c) und Abb. B.1-B.2) zeigen den vollverspannten Zustand und die tetragonale Verzerrung der pseudo kubischen Kristallstruktur entlang $[001]_{\text{pc}}$ in out-of-plane Richtung an. Die aus den reziproken Raumkarten bestimmte out-of-plane Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}} = 3,949(6) \text{ \AA}$ ist in guter Übereinstimmung mit der mittels der Bragg-Bedingung berechneten Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}} = 3,950(4) \text{ \AA}$ aus der klassischen Röntgenbeugung.

Messungen der feld- und temperaturabhängigen Magnetisierung für Orientierungen des externen Magnetfelds parallel und senkrecht zur Probenoberfläche zeigen eine leichte Magnetisierungsachse in out-of-plane Richtung an. Die auftretenden Hysteresen lassen sich als Superposition zweier unabhängiger Magnetisierungen beschreiben. Dabei ist eine der beiden Magnetisierung dominant ($\sim 88\%$ der Gesamtmagnetisierung). In der temperaturabhängigen Magnetisierung für Magnetfeldorientierung in der Filmebene zeigt sich für unterschiedliche Wiederholungen k der identischen Bilagenstruktur im Vergleich zu reinem SrRuO_3 eine Reduzierung der ferromagnetischen Ordnungstemperatur und der Sättigungsmagnetisierung mit abnehmender Anzahl an Wiederholungen. Erklären lässt sich dies mit der Symmetrie der Multilagenstruktur. Die Spins im SrRuO_3 richten sich parallel entlang des angelegten Magnetfelds aus. Durch die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung werden die Spins an der Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 aus ihrer kollinearen in eine nicht-kollineare Anordnung gedreht. Dies resultiert bei der Messung der Magnetisierung innerhalb der Filmebene zu einer Reduzierung des magnetischen Moments. Ist die SrRuO_3 Lage zwischen zwei SrIrO_3 Schichten, so führt die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung zu entgegengerichteten Spinanordnungen senkrecht zur Grenzfläche. In der out-of-plane Magnetisierung heben sich die Effekte der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung gegeneinander auf. Für die Magnetisierung in der Filmebene, d.h. parallel zur Grenzfläche, ergeben sich aus der Projektion der nicht-kollinearen Spinstruktur an der Grenzfläche ein reduziertes Moment. Mit zunehmender Anzahl k an Wiederholungen nähern sich die magnetischen Eigenschaften der Heterostruktur denen eines reinen SrRuO_3 Dünnsfilms an.

Hall-Effekt

In Messungen des temperaturabhängigen Hall-Effekts konnte über den Beitrag des normalen Hall-Effekt für die Ladungsträger ein elektronenartiger Charakter nachgewiesen werden. Die normale Hallkonstante der Heterostruktur ähnelt bis zu $T = 80$ K dabei der eines reinen SrRuO_3 Films. Unterhalb von 80 K ist in der Heterostruktur die normale Hallkonstante betragsmäßig größer, wodurch eine kleinere Ladungsträgerdichte angezeigt wird.

Im anomalen Hall-Effekt lässt sich ein Vorzeichenwechsel beobachten, mit einer negativen anomalen Hallkonstante R_s unterhalb von $T = 80$ K und einer positiven anomalen Hallkonstante oberhalb von 80 K. Die anomale Hallkonstante R_s zeigt für Temperaturen $T > 65$ K eine lineare Abhängigkeit vom Längswiderstand ρ_{xx} . Dies lässt auf das extrinsische Skew-Scattering als dominanten Streumechanismus in diesem Temperaturbereich schließen. Unterhalb von 65 K besitzt R_s eine quadratische Abhängigkeit von ρ_{xx} . Damit stellen das Side-Jump-Scattering und der intrinsische Beitrag durch die Berry-Phase die dominanten Streumechanismen in diesem Temperaturbereich dar. Der Kurvenverlauf des anomalen Hall-Effekts kann mittels zwei voneinander unabhängiger Beiträge beschrieben werden. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der feldabhängigen Magnetisierung, in der ebenfalls zwei Beiträge gefunden werden konnten. In der Literatur [2, 215] werden die zwei Beiträge zum anomalen Hall-Effekt mit zwei voneinander unabhängigen Leitungs Kanälen durch die Berry-Krümmung der nicht-trivialen Bänder des SrRuO_3 erklärt. Über den gesamten Temperaturbereich $10 \text{ K} \leq T \leq 110 \text{ K}$ weisen die beiden Beiträge zum anomalen Hall-Effekt dasselbe Vorzeichen auf. Dies steht im Kontrast zu der Betrachtung in der Doktorarbeit von Dr. Dirk Groenendijk [215] in Bezug zu Heterostrukturen aus der Trilogie $\text{SrTiO}_3/\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$, in der unterschiedliche Vorzeichen für die beiden Beiträge gefunden wurden.

Nach Abzug des mit dem 2-Kanal modellierten anomalen Hall-Effekts tritt unterhalb von 80 K ein zusätzlicher Beitrag im Hall-Effekt auf, der über den gesamten betrachteten Temperaturbereich bei dem Feld H_{sk} mit derselben relativen Verschiebung ΔH zum Koerzitivfeld H_{c1} lokalisiert ist. Dieser kann mit dem topologischen Hall-Effekt erklärt werden, der durch Néel-Skyrmionen an der Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 hervorgerufen wird. Die Größe der Skyrmionen kann für Temperaturen $T \leq 65$ K zu $r_{\text{sk}} \approx 15$ nm bis 20 nm abgeschätzt werden. Vergleicht man diese abgeschätzte Skyrmionengröße mit einer $(\text{SrIrO}_3)_2/(\text{SrRuO}_3)_5$ Bilage von Ohuchi *et al.* [207], so passen die abgeschätzten

Größen der Skyrmionen gut überein. Wie in Abb. 5.25(a) dargestellt ist, ist in den Heterostrukturen der zusätzliche Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ betragsmäßig größer als in der einzelnen Bilage. Außerdem lässt sich dieser bei höheren Temperaturen beobachten. Dies macht es in den Heterostrukturen einfacher den zusätzlichen Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ im gemessenen Hall-Effekt zu identifizieren.

Für Messungen des winkelabhängigen Hall-Effekts wurde das externe Magnetfeld \vec{H} einmal in der Ebene, die aus der Probennormalen \vec{n} und der Stromrichtung \vec{j} aufgespannt wird, und einmal in der Ebene, die durch die Richtungen \vec{n} und der in der Filmebene senkrecht zum Stromfluss stehenden Richtung $\vec{t} = \vec{j} \times \vec{n}$ gedreht. Der Beitrag des normalen Hall-Effekts zeigt dabei keine signifikante Abhängigkeit von der Drehrichtung, sondern hängt von der Orientierung des Magnetfelds zur Probennormalen \vec{n} ab. Die normale Hallkonstante R_0 für Feldorientierungen in der Filmebene beträgt etwa 7,78% der normalen Hallkonstante R_0^{op} für Magnetfelder senkrecht zur Probenoberfläche. Der Vergleich mit der normalen Hallkonstante für reines SrRuO_3 zeigt für den Winkelbereich von 55° bis 90° ähnliche Werte an. Dagegen ist R_0 der Heterostruktur für Feldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche, also für den Drehwinkel 0° , bis zu einer Drehung bis 55° betragsmäßig größer als im reinen SrRuO_3 .

Die Winkelabhängigkeit des isotropen anomalen Hall-Effekt konnte ebenfalls mit dem 2-Kanal Modell modelliert werden. Dabei stellt sich heraus, dass das gedrehte Magnetfeld die beiden Beiträge ρ_{s1} und ρ_{s2} unterschiedlich beeinflusst. Während für ρ_{s1} die Hysteresebreite und -größe sowie das negative Vorzeichen relativ unbeeinflusst bleibt, ändern sich diese Parameter für den zweiten Kanal ρ_{s2} enorm. Für Drehungen des magnetischen Felds bis 45° aus der Probennormalen heraus haben die beiden Beiträge zum anomalen Hall-Effekt dasselbe Vorzeichen, wogegen sich das Vorzeichen von ρ_{s2} gegenüber ρ_{s1} für größere Drehungen umkehrt. Durch die unterschiedlichen Vorzeichen ergibt sich bei der Addition von ρ_{s1} und ρ_{s2} die charakteristischen Formen der gemessenen Winkelabhängigkeit im Hall-Effekt. In Messungen mit symmetrischen, d.h. $\mu_0 H_{\text{Start}} = -\mu_0 H_{\text{Ende}}$, und asymmetrischen ($\mu_0 H_{\text{Start}} \neq -\mu_0 H_{\text{Ende}}$) Magnetfeld-Sweeps lassen sich die charakteristischen Kurvenverläufe im Hall-Effekt beobachten, wenn das angelegte Magnetfeld größer als die beiden Koerzitivfelder H_{c1} bzw. H_{c2} ist (vgl. Appendix C). Wenn eines der Koerzitivfelder nicht überschritten wird, also der anomale Hall-Effekt in diesem Kanal sich nicht ändert, ist nur die Signatur des anderen Kanals im Hall-Effekt sichtbar. Das bestätigt die Annahme von zwei unabhängigen Beiträgen im anomalen Hall-Effekt.

Nach Abzug des modellierten anomalen Hall-Effekts findet man vergleichbar zu den temperaturabhängigen Hall-Effekt Messungen mit Feldorientierung senkrecht zur Probenoberfläche und senkrecht zur Stromrichtung einen zusätzlichen Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$, der für Drehwinkel zwischen den kritischen Winkeln $\beta_{c,2} = 140^\circ$ und $\beta_{c,3} = 225^\circ$, sowie zwischen $\beta_{c,4} = 310^\circ$ und $\beta_{c,1} = 45^\circ$ auftritt. Dieser zusätzliche Beitrag tritt im selben Feldbereich auf, was auf die Formation von Néel-Skyrmionen schließen lässt, welche sich bei der Drehung des Magnetfelds in die Filmebene hinein verzerren. Aus $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ konnte die normierte Größe dieser Skyrmionen auf $r_{\text{sk}}/|\cos\beta| \approx 20\text{ nm}$ für die Winkelbereiche $140^\circ \leq \beta_1 \leq 225^\circ$ und $310^\circ \leq \beta_2 \leq 45^\circ$ abgeschätzt werden. Dies lässt auf eine sehr große Stabilität der gebildeten Skyrmionen gegenüber Drehungen des Magnetfelds schließen.

Zwischen den Drehwinkel $\beta_{i,1} = 70^\circ$ und $\beta_{i,2} = 110^\circ$, sowie zwischen $\beta_{i,3} = 250^\circ$ und $\beta_{i,4} = 290^\circ$ lassen sich im Hall-Effekt ebenfalls ein zusätzlicher Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ beobachten. Im Gegensatz zu Feldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche, bei denen das Maximum von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei $\mu_0 H_{\text{sk}} \approx 0,4\text{ T}$ auftritt, lässt sich das Maximum von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei Feldrichtungen parallel zur Probenoberfläche bei etwa den doppelten Feldern ($\mu_0 H_{\text{sk}} \approx 0,8\text{ T}$) beobachten. Dies spricht dafür, dass bei den in-plane orientierten Magnetfeldern der zusätzliche Beitrag nicht von Néel-Skyrmionen hervorgerufen werden. Dies zeigt sich auch daran, dass die relative Verschiebung ΔH zwischen dem Maximalfeld H_{sk} und dem Koerzitivfeld H_{c1} für in-plane und out-of-plane orientierten Feldern unterschiedlich sind. Während in den zuvor identifizierten Winkelbereichen mit stabilen Néel-Skyrmionen eine relative Verschiebung $\Delta H \approx 0,1\text{ T}$ über den gesamten Bereich aufweist, vergrößert sich die relative Verschiebung zu $\Delta H > 0,4\text{ T}$. Zudem sind Néel-Skyrmionen in einem ferromagnetischen Hintergrund mit in-plane Orientierung nicht stabil. Eine mögliche Erklärung für $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ in diesem Winkelbereich könnte in der Formation von sogenannten Bimeronen liegen, die auch als in-plane Skyrmionen bezeichnet werden (siehe Kapitel 2.3.2). Bimeronen bilden sich durch die Paarung eines Merons und eines Antimerons mit entgegen gerichteter Polarität p und haben daher dieselbe Skyrmionenzahl N_{sk} wie Néel-Skyrmionen. Aufgrund ihrer Struktur sind Bimeronen stabil in einem in-plane orientiertem ferromagnetischen Hintergrund [226]. Das von ihnen hervorgerufene effektive magnetische Feld B_{em} zeigt jedoch wie bei Néel-Skyrmionen entlang der out-of-plane Richtung (siehe Abb. 2.12). Daher kann durch die Bimeronen ebenfalls ein zusätzlicher Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ zum Hall-Effekt erzeugt werden.

Die Interpretation des in den temperatur- und winkelabhängigen Hall-Effekt Messungen gefundenen zusätzlichen Beitrags als topologischer Hall-Effekt und der damit verbundenen Formation von Néel-Skymionen ist in guter Übereinstimmung mit Messungen von Huang *et al.* [227]. Diese fanden in 4 Monolagen dicken SrRuO₃ Filmen mittels resonanter weicher Röntgenstreuung (RSXS) und zirkularem magnetischen Röntgendichroismus (XMCD) Anzeichen für Néelartige Spinstrukturen, was die Annahme der Skymionenbildung in unseren Heterostrukturen unterstützt.

Vergleicht man die Winkelabhängigkeit im Hall-Effekt der Heterostrukturen mit den Messungen von Miao *et al.* [228] an relaxierten SrRuO₃ Schichten, so lassen sich zwei signifikante Unterschiede erkennen. Zum einen ändert sich der Verlauf des Hall-Effekts für Drehungen des Magnetfelds von out-of-plane (0°) bis zu einem Winkel von 50° nicht. Zum anderen bleibt dadurch bei ihnen der absolute Wert des zusätzlichen Beitrags konstant. Dies steht im Gegensatz zu unseren Messungen, bei denen nicht der absolute Wert von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$, sondern der normierte Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}/\cos\beta$ konstant ist. Miao *et al.* interpretierten das Auftreten des zusätzlichen Beitrags mit dem Vorhandensein von magnetischen Inhomogenitäten, die durch Relaxation der SrRuO₃ Schicht hervorgerufen werden. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]_k Heterostrukturen (siehe Abb. B.1 und B.2) sind nicht relaxiert, sondern vollverspannt gewachsen. Daher können magnetische Inhomogenitäten, die durch eine mögliche Relaxation des Systems erzeugt werden, nicht ursächlich für den zusätzlichen Beitrag in den symmetrischen [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]_k Heterostrukturen sein. Dies spricht ebenfalls für eine Interpretation des zusätzlichen Beitrags $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ als topologischen Hall-Effekts, der durch Skymionen hervorgerufen wird.

In den von Yang *et al.* [229] untersuchten Multilagen, die aus der Trilage (SrIrO₃)₂/(SrRuO₃)₆/(SrIrO₃)₂ aufgebaut sind, heben sich wegen den symmetrischen Randbedingungen die Effekte der Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung an der oberen und unteren Grenzfläche in jeder SrRuO₃-Schicht auf. Daher sollte sich in diesen Proben keine Skymionen bilden. In der Ableitung der temperaturabhängigen Magnetisierung fanden sie mehrere Curie-Temperaturen T_C , was sie auf unterschiedliche Magnetisierungen der einzelnen SrRuO₃ Schichten zurückführten. Im Hall-Effekt ergibt sich dadurch ein zusätzlicher Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$.

Bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten [(SrRuO₃)₅/(SrIrO₃)₂]_k Heterostrukturen lässt sich dagegen nur eine Curie-Temperatur beobachten. Daher können für die einzelnen SrRuO₃ ähnliche elektronischen und magnetischen Ei-

genschaften angenommen werden. Im Vergleich zu der Trilagenstruktur besitzt die unterste SrRuO_3 Schicht in den hergestellten Heterostrukturen Grenzflächen sowohl zu SrIrO_3 (obere Grenzfläche) als auch zu SrTiO_3 (untere Grenzfläche). Dadurch ergibt sich in dieser SrRuO_3 Lage für alle $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostrukturen eine nicht verschwindende Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung und begünstigt damit eine mögliche Skyrmionenbildung.

Der Vergleich des von Skyrmionen hervorgerufene zusätzlichen Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ von einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostruktur mit $k = 5$ und $k = 10$ Wiederholungen und der mit Gleichung (2.10) berechneten Skyrmionendichte n_{sk} (siehe Abb. 5.25), zeigt für beide Anzahl an Wiederholungen ähnliche Werte und Verläufe.

Der zusätzliche Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ ergibt sich aus dem gemessenen spezifischen Hall-Widerstand ρ_{xy} nach Abzug der spezifischen Widerstandsbeiträge des normalen (ρ_{OHE}) und des anomalen Hall-Effekts (ρ_{AHE}). Somit sollte die Proben-geometrie keinen Einfluss auf den Wert von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ haben. Stattdessen ist nach Gleichung (2.10) die Dichte n_{sk} der Skyrmionen ein entscheidender Faktor für die Größe von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$. Daher kann die Ähnlichkeit von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ für die Heterostruktur mit $k = 5$ und $k = 10$ Wiederholungen auf die Größe der Skyrmionen zurückgeführt werden. Dies spricht dafür, dass unabhängig von den Wiederholungen k sich nur in der untersten SrRuO_3 Lage Skyrmionen bilden.

Wird der zusätzliche Hall-Effekt durch unterschiedliche magnetische Domänen [216] oder durch Defekte, wie beispielsweise Ru Fehlstellen [230], hervorgerufen, ergibt sich das Maximum von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei der Temperatur T_S , an der im anomalen Hall-Effekt der Vorzeichenwechsel auftritt. Der Grund hierfür liegt daran, dass die Domänen unterschiedliche Beiträge zum anomalen Hall-Effekt hervorgerufen werden. Ein signifikanter Unterschied zwischen diesen Kanälen ist die lokale Temperatur $T_{S, \text{Lokal}}$, bei der in den unterschiedlichen Anteilen des anomalen Hall-Effekt der lokale Vorzeichenwechsel auftritt [231]. Dabei gilt $T_{S, \text{Lokal}, 1} < T_S < T_{S, \text{Lokal}, 2}$, was zu den unterschiedlichen Vorzeichen der Einzelbeiträge $\rho_{\text{AHE}1}$ und $\rho_{\text{AHE}2}$ führt. Werden nun die Einzelbeiträge addiert, ergibt sich im gemessenen Hall-Effekt der zusätzliche Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$. Im Bereich des (globalen) Vorzeichenwechsels T_S gilt, dass die beiden Kanäle des anomalen Hall-Effekts vergleichbare Absolutwerte im Widerstand, also $\rho_{\text{AHE}1} \approx \rho_{\text{AHE}2}$ haben. Dagegen tragen die beiden Kanäle bei Temperaturen $T \neq T_S$ mit unterschiedlich großen Anteilen bei. Daher ist beim globalen Vorzeichenwechsel der Wert von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ maximal.

In unseren Heterostrukturen tritt der Vorzeichenwechsel in ρ_{AHE} im Bereich $75 \text{ K} < T_S < 80 \text{ K}$ auf, wogegen der maximale Wert von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ bei 10 K liegt. Zudem ergab sich in der Beschreibung des temperaturabhängigen Hall-Effekts mit dem verwendeten 2-Kanal Modell bei allen Temperaturen für beide Kanäle das gleiche Vorzeichen. Dies spricht gegen Defekte und unterschiedlich magnetische Domänen als Ursache für den zusätzlichen Hall-Beitrag $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ und können somit ausgeschlossen werden.

Für die in dieser Arbeit untersuchten $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostrukturen lässt sich der zusätzliche Beitrag zum Hall-Effekt nicht durch eine der alternativen Ursachen erklären. Dies unterstützt die Identifikation von $\Delta\rho_{\text{Hall}}$ als ein durch Skyrmionen hervorgerufener topologischer Hall-Effekt.

Magnetwiderstand

Bei Magnetfeldorientierungen senkrecht zur Probenoberfläche zeigt sich für tiefe Temperaturen im Bereich größerer Felder ein positiver und bei höheren Temperaturen ein negativer Magnetwiderstand. Die Übergangstemperatur liegt bei $T = 60 \text{ K}$ und ist damit im Bereich des Vorzeichenwechsel im anomalen Hall-Effekt. Dies legt den Schluss nahe, dass der Vorzeichenwechsel im Magnetwiderstand mit der Änderung des dominanten Streumechanismus für die Leitungselektronen zusammenhängt. Im Bereich kleiner Felder kann im feldabhängigen Verlauf eine Hysterese beobachtet werden, die mit zunehmender Temperatur kleiner wird.

Für die theoretische Beschreibung des feldabhängigen Magnetwiderstands wurde in Analogie zu dem verwendeten 2-Kanal Modell zur Beschreibung des anomalen Hall-Effekts eine Modellfunktion bestehend aus zwei voneinander unabhängigen Beiträgen aufgesetzt werden, mit dem für alle Temperaturen der Verlauf des gemessenen Magnetwiderstand modelliert werden konnte. Der Vergleich der charakteristischen Felder H_{c1} , H_{c2} , H_{s1} und H_{s2} mit Messungen der Magnetisierung und des anomalen Hall-Effekts ergeben im Rahmen der Messgenauigkeit ähnliche Werte und Verläufe. Aus dem Modell wird ersichtlich, dass der gemischte Beitrag aus den beiden Kanälen, in dem neben der impliziten Feldabhängigkeit über die Magnetisierungen $M_1(\mu_0 H)$ und $M_2(\mu_0 H)$ auch ein explizit linearer Zusammenhang zum Magnetfeld gegeben ist, der den Magnetwiderstand dominiert.

In Messungen des temperaturabhängigen Magnetwiderstands konnte die ferromagnetische Ordnung sowohl für Magnetfeldorientierungen senkrecht zur Filmebene als auch parallel zum Stromfluss beobachtet werden. Unabhängig von der Magnetfeldorientierung tritt die Ordnung bei derselben Temperatur T_C ein. Ober-

halb dieser wird der elektrische Widerstand durch das Magnetfeld nicht beeinflusst, wogegen unterhalb der Ordnungstemperatur für die beiden gemessenen Feldorientierungen ein ähnliches Verhalten gefunden wurde. Für eine Magnetfeldorientierung parallel zum Stromfluss stellte sich ein negativer Magnetwiderstand ein und bei out-of-plane orientiertem Magnetfeld ist der Magnetwiderstand bei tiefen Temperaturen positiv.

Dies motivierte die Untersuchung des winkelabhängigen Magnetwiderstands. Dafür wurde zunächst bei 10 K die Feldabhängigkeit für dieselben Drehwinkel θ und β wie bei der Analyse des winkelabhängigen Hall-Effekts gemessen. Der Magnetwiderstand für die orthogonal zueinander orientierten Drehrichtungen zeigt dabei ein deutlich unterscheidbares Verhalten. Bei Drehungen des externen Magnetfelds parallel zum Strom findet man für Winkel bis 40° zum einen eine Vergrößerung des positiven Magnetwiderstands und zum anderen eine Verbreiterung der Hysterese. Wird das Magnetfeld weiter in die Filmebene hineingedreht, reduziert sich die Hysterese und der Magnetwiderstand wird negativ. Dagegen zeigt sich bei Drehungen des Magnetfelds senkrecht zum Stromfluss unter allen Drehwinkeln β ein positiver Magnetwiderstand, der für Drehungen des Magnetfelds bis 40° aus der Probennormalen heraus zunimmt und anschließend konstant bleibt. Die beobachtete Hysterese wird durch das Magnetfeld für $0^\circ \leq \beta \leq 40^\circ$ unbeeinflusst und nimmt für $45^\circ \leq \beta \leq 90^\circ$ ab.

Mit dem zuvor aufgestellten Modell konnte die Winkelabhängigkeit für beide Drehrichtungen beschrieben werden. Die aus der Anpassung ermittelten charakteristischen Felder stimmen gut mit denen aus der Analyse der Winkelabhängigkeit des anomalen Hall-Effekts überein, womit sich die Eignung des aufgestellten Modells zur Beschreibung des feldabhängigen Magnetwiderstands wieder spiegelt.

Die magnetische Anisotropie der Heterostrukturen konnte durch Messungen des winkelabhängigen Magnetwiderstands und Hall-Effekts in einem konstanten Magnetfeld und der Modellierung des anisotropen Magnetwiderstands bestimmt werden. Aus diesen konnte ermittelt werden, dass die Richtung der magnetischen Anisotropie bei kleinen Feldern um 21° aus der out-of-plane Richtung gedreht ist und sich bei größeren Feldern in Richtung der Probennormalen orientiert. Für Drehungen in der yz -Ebene senkrecht zum Strom zeigt sich nur eine kleine Änderung in ρ_{xx} , wohingegen sich bei Drehungen in der xz -Ebene eine deutliche Änderung einstellt. Dies ist in Einklang mit der beobachteten Feldabhängigkeit des Magnetwiderstands unter konstanten Winkeln für beide Drehrichtungen.

Aus den erhaltenen Widerstandsparametern $\rho_j(\varphi)$ konnte ein Teil der Entwicklungskoeffizienten, die bei der Beschreibung des winkelabhängigen Magnetwiderstands in einem konstanten Magnetfeld eingeführt wurden, bestimmt werden. Diese sind als Linearkombinationen mit den Komponenten der galvanomagnetischen Tensoren [93] verknüpft und beschreiben die auftretenden Effekte im Magnetotransport über Kristalleigenschaften des Systems [92].

Die gefundene magnetische Anisotropie spiegelt sich auch in dem anisotropen Magnetwiderstand in der xy -Ebene (in-plane) und dem AMR in der xz -Ebene (out-of-plane) wider. In den winkelabhängigen Messungen des Magnetwiderstands im konstanten Magnetfeld für Drehungen in der yz -Ebene, als auch in der Feldabhängigkeit des Magnetwiderstands entlang der $[001]$ - sowie entlang der $[010]$ -Richtung, zeigt sich keine große Richtungsabhängigkeit, wodurch im in-plane und out-of-plane AMR ein ähnliches Verhalten auftritt.

Ausblick

Um die magnetische Anisotropie in den $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostrukturen besser zu verstehen, können durch winkelabhängige Messungen weitere Entwicklungskoeffizienten bestimmt werden. Dafür kann für den generalisierten Magnetwiderstand ρ_{xx} und den Hall-Effekt ρ_{xy} zum einen für eine Orientierung der in-plane Magnetisierung für beispielsweise $\varphi = 45^\circ$, also $m_x = m_y$, mit dem Stromfluss $j \parallel [100]$ ($t \parallel [100]$) und zum anderen durch passende Strukturierung der Proben auch mit einer Stromorientierung $j \parallel [110]$ ($t \parallel [\bar{1}10]$) gemessen werden. Außerdem kann durch Messungen für verschiedene in-plane Magnetisierungsorientierungen $0^\circ \leq \varphi \leq 90^\circ$ in kleinen Magnetfeldern, zum Beispiel 1 T die Orientierung der leichten magnetischen Achse, wie in Abb. 5.45(d) für die Endpunkte dargestellt, nachvollzogen werden.

Interessant ist auch die Untersuchung des feldabhängigen Magnetwiderstands für verschiedene in-plane Orientierungen φ des angelegten Magnetfelds. Wie in Abbildung 5.47 dargestellt zeigt der Magnetwiderstand entlang der $[100]$ -Richtung ($\theta = 90^\circ$, entspricht $\varphi = 0^\circ$) einen negativen und entlang der $[010]$ -Richtung ($\beta = 90^\circ$, entspricht $\varphi = 90^\circ$) einen positiven Verlauf. Es müsste demnach eine kritische in-plane Orientierung φ_{krit} des Magnetfelds geben, bei dem der Vorzeichenwechsel im Magnetwiderstand stattfindet.

Nach Gleichung (2.13) zeigt der Hall-Effekt für $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ dieselbe Winkelabhängigkeit. Dies entspricht auch der beobachteten Feldabhängigkeit unter konstantem Winkel. Dagegen treten für $0^\circ < \varphi < 90^\circ$ zusätzliche Beiträge im

Hall-Effekt auf. Im feldabhängigen Verlauf sollten sich demnach ebenfalls Effekte durch diese zusätzlichen Beiträge beobachten lassen. Auch der feldabhängige Hall-Effekt mit einem Stromfluss $j \parallel [110]$ sollte sich von den Messungen für $j \parallel [100]$ unterscheiden. Nach Abzug des normalen ρ_{OHE} und des anomalen Hall-Effekts ρ_{AHE} in diesen Messkonfigurationen könnten sich zusätzliche Informationen bezüglich der Stabilität der formierten Skyrmionen ergeben.

Der Nachweis von Skyrmionen durch Hall-Effekt Messungen ist jedoch nur eine indirekte Möglichkeit. Daher ist der Vergleich mit direkten Abbildungsmethoden, wie beispielsweise die Elektronenholographie, die Lorentz-Transmissionselektronenmikroskopie (L-TEM) oder die magnetische Kraftmikroskopie (MFM), mit denen magnetischen Strukturen dargestellt werden können, von Interesse. Zhang *et al.* [232] konnten in $\text{Ta}(3\text{ nm})/\text{Pt}(1,5\text{ nm})/\text{Co}(t\text{ nm})/\text{Ta}(1\text{ nm})_{20}$ Heterostrukturen, mit verschiedenen Schichtdicken t des Kobalts, durch Kombinationen aus MFM und L-TEM Messungen sogar Deformationen der Néel-Skyrmionen nachweisen. Dafür wurde eine $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Bilage der Gruppe um Dr. Peter Milde an der TU Dresden für MFM Messungen, sowie eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur der Gruppe um Dr. Bernd Rellinghaus (TU Dresden) für Untersuchungen mittels L-TEM und Elektronenholographie bereitgestellt.

Des Weiteren sind in Zusammenarbeit mit der Gruppe um Dr. Hans Werner Schumacher an der PTB Braunschweig ergänzende Untersuchungen der Heterostrukturen geplant. Über zeitaufgelösten Messungen des Magnetooptischen Kerr-Effekts (TR-MOKE) soll dabei die Magnetisierungsdynamik besser verstanden werden. Außerdem sollen elektrische Transportmessungen in einem Kryostaten, der mit einem Vektormagneten ausgestattet ist, weitere Informationen über die magnetische Anisotropie des Systems liefern.

Eine theoretische Betrachtung des Systems erfolgt durch die Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Rossitza Pentcheva der Universität Duisburg-Essen, die mittels DFT-Rechnungen die Beeinflussung der Bandstruktur durch die Spin-Bahn Kopplung und durch verschiedene Dicken der SrRuO_3 Lagen untersuchen und die anomale Hall-Leitfähigkeit (AHC) bestimmen.

Dafür berechnete Jiangyao Wu die Bandstruktur für $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostrukturen (siehe Appendix D). Unter Berücksichtigung von lokalen Korrelationseffekten und einer Spin-Bahn Kopplung entlang der $[001]$ -Richtung konnten die magnetischen Spinmomente in den einzelnen SrRuO_3 Lagen zu $M_{\text{Ru}} \approx 1,38\mu_{\text{B}} - 1,41\mu_{\text{B}}$ bestimmt werden. Diese sind vergleichbar mit dem ebenfalls berechneten Spinmoment von $M_{\text{Ru}}^{\text{Bulk}} \approx 1,39\mu_{\text{B}}$ in Bulkproben von SrRuO_3 . Das

magnetische Moment der SrRuO_3 Lage an der Grenzfläche zu SrIrO_3 ist jedoch im Vergleich zu den anderen SrRuO_3 Lagen reduziert. Außerdem ergaben die Rechnungen, dass im Iridium ein magnetisches Spinmoment von $M_{\text{Ir}} \approx 0,09 \mu_{\text{B}}$ induziert wird. Dies ist ein Unterschied zu Bulk SrIrO_3 , das paramagnetisch ist.

Ursächlich hierfür könnte eine Änderung der Ir^{4+} und der Ru^{4+} Valenz durch einen Ladungstransfer im Bereich der Grenzfläche sein. Nominell besitzt der A-Platz in SrRuO_3 und SrIrO_3 dieselbe Valenz. Damit ist auch die Valenz des Übergangsmetallions (Ru und Ir) auf dem B-Platz nominell gleich. An der Grenzfläche zwischen SrRuO_3 und SrIrO_3 sollte es daher keinen Ladungstransfer geben (siehe Kapitel 5.1.3). Zhong *et al.* [233] zeigten mittels DFT-Rechnungen jedoch, dass die Anpassung der Sauerstoffzustände an der Grenzfläche zu einer Verschiebung der Fermienergie E_{F} zwischen den beiden Perowskiten kommt. Da E_{F} im Gleichgewichtszustand über die gesamte Heterostruktur konstant sein muss, kommt es zu einem Ladungstransfer. Im Bereich der Grenzfläche kann dies im Iridium zu einer ferromagnetischen Ordnung der Spins führen. In Heterostrukturen aus SrIrO_3 und SrMnO_3 konnte ein ähnliches Verhalten als Grenzflächenferromagnetismus beobachtet werden [234]. Messungen mittels polarisationsabhängiger Röntgenabsorptionsspektroskopie (XAS) oder zirkular magnetischen Röntgendi-chroismus (XMCD) an der Ir- und Ru-Kante könnten zeigen, ob in den hergestellten $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Heterostrukturen sowohl SrRuO_3 als auch SrIrO_3 ferromagnetisch ordnet.

Um die magnetische Kopplung zwischen zwei aufeinander folgenden $(\text{SrRuO}_3)_m$ Schichten zu bestimmen, wurden beispielhaft an einer $[(\text{SrRuO}_3)_3/(\text{SrIrO}_3)_2]_2$ Heterostruktur Rechnungen sowohl mit ferromagnetischer als auch mit antiferromagnetischer Kopplung der $(\text{SrRuO}_3)_3$ Schichten durchgeführt. Aus den Rechnungen geht hervor, dass eine ferromagnetische Kopplung zwischen zwei $(\text{SrRuO}_3)_3$ Schichten, die durch zwei Monolagen (SrIrO_3) getrennt sind, favorisiert wird.

Aus den experimentellen Hall-Effekt Messungen kann die Herkunft der beiden unabhängigen Streukanäle im anomalen Hall-Effekt nicht hergeleitet werden. Der erste Erklärungsansatz kann in der Doktorarbeit von Dr. Dirk Groenendijk [215] für die Beschreibung des anomalen Hall-Effekts von ultradünnen SrRuO_3 Filmen gefunden werden. Für die Beschreibung ihrer SrRuO_3 Filme berechneten sie zunächst die elektronische Struktur von Monolayer SrRuO_3 mittels Tight-Binding Rechnungen. Die erhaltene elektronische Struktur fassten sie in zwei Gruppen mit jeweils 3 Bändern unterschiedlicher Spin-Bahn Parität zusammen. Zwei dieser Bänder zeigen nicht-trivialen Charakter mit den Chernzahlen $C = \pm 2$, wo-

hingegen das dritte Band ein triviales Band mit $C = 0$ ist. In ihren Rechnungen fanden sie, dass das niedrigste Band einen nicht-trivialen Charakter hat. Dies führt dazu, dass die Berry-Krümmung stabil gegen Änderungen der Elektronenbesetzung ist. Durch die relative Besetzung der Bänder kommt es zu der Dominanz eines Streukanals. Den Einfluss symmetrischer Randbedingungen auf die Besetzung der t_{2g} -Bänder von SrRuO_3 untersuchten Groenendijk *et al.* [2, 215] beispielsweise durch Grenzflächen zu SrIrO_3 . Hier zeigte sich, dass die Anpassung der elektronischen Struktur an den Grenzflächen einen erheblichen Einfluss hat. In der Heterostruktur wird die Berry-Krümmung durch die Hybridisierung der d_{xz} - und d_{yz} -Orbitale zwischen Ruthenium und Iridium modifiziert. Ebenso fanden sie, dass ein verkanten der Magnetisierung an der Grenzfläche die Berry-Krümmung beeinflusst. Anhand dieser Ergebnisse modellierten sie den anomalen Hall-Effekt als Summe aus 2 unabhängigen Leitungskanälen. Der jeweilige Widerstand des Leitungskanals ergibt sich aus dem Gleichgewicht der nicht-trivialen Bänder ($C = \pm 2$).

Ein alternativer Erklärungsansatz für die 2 unabhängigen Streukanäle kann anhand der Bandstruktur einer $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostruktur mit Spin-Bahn Kopplung entlang der $[001]$ -Richtung entwickelt werden. Die berechnete Bandstruktur ist in Abb. D.1(b) dargestellt. In dieser lassen sich mehrere Bänder beobachten, welche die Fermienergie kreuzen. Bei einer näheren Betrachtung des orbitalen Charakters der Bänder in den einzelnen Lagen (vgl. Abb. D.2) zeigt sich, dass in den SrRuO_3 und den SrIrO_3 Schichten die dispersiven Bänder vorwiegend d_{xy} Charakter haben. Zusätzlich treten in den SrRuO_3 Lagen auch flachere Bänder mit vornehmlich d_{xz} Charakter auf, die vorwiegend im Bereich der Grenzfläche zu SrIrO_3 liegen. Diese 2 unterschiedlichen Arten von Bändern könnten die Ursache für die beiden unabhängigen Streukanäle im Hall-Effekt sein.

Ein zweites Modell für die Beschreibung der 2 unabhängigen Streukanäle kann auf der möglichen ferromagnetischen Ordnung in den SrIrO_3 Schichten aufgebaut werden. In der Heterostruktur wird in den SrIrO_3 Lagen nach der theoretischen Betrachtung ein endliches magnetisches Moment induziert. Damit kann durch die Magnetisierung der SrIrO_3 Lagen ein anomaler Hall-Effekt erzeugt werden. Dieser ist jedoch gegenüber dem anomalen Hall-Effekt, der durch die SrRuO_3 Schichten hervorgerufen wird, sehr viel kleiner. In diesem Modell ergibt sich der dominantere Streukanal aus dem Beitrag der SrRuO_3 Schichten, wohingegen der zweite Kanal sich aus der induzierten Magnetisierung im SrIrO_3 ergibt. Die experimentelle Bestimmung der magnetischen Ordnung im SrIrO_3 mittels XAS oder XMCD

kann dabei helfen dieses alternative Modell zu verifizieren oder zu widerlegen.

Bei Abgabe der Arbeit waren die Untersuchungen mit diesen ergänzenden experimentellen und theoretischen Betrachtungen noch nicht abgeschlossen und würden den zeitlichen Rahmen dieser Arbeit überschreiten.

Transfer-Matrix-Methode - Simulation des Ellipsometriesignals

Bei der Transfer-Matrix-Methode werden für die Simulation der Ellipsometrie die in Gleichung A.1 - A.3 angegebenen Matrizen für den Beitrag der einzelnen Schicht j verwendet. Bei dieser Methode wird die Reflexion von Licht an der Grenzfläche zwischen Luft (Index 0) und der j -ten Filmlage betrachtet.

$$\left(R_{0,j}\right)_{p,s} = \frac{1}{(t_{0,j})_{p,s}} \begin{pmatrix} 1 & r_{0,j} \\ r_{0,j} & 1 \end{pmatrix}_{p,s} \quad (\text{A.1})$$

$$\left(R_{j,0}\right)_{p,s} = \frac{1}{(t_{j,0})_{p,s}} \begin{pmatrix} 1 & -r_{0,j} \\ -r_{0,j} & 1 \end{pmatrix}_{p,s} \quad (\text{A.2})$$

$$L_j = \begin{pmatrix} e^{-i\beta(d_j, N_j)} & 0 \\ 0 & e^{i\beta(d_j, N_j)} \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

Die Fresnelkoeffizienten ändern sich durch raue Oberflächen bzw. Grenzflächen mit RMS-Rauigkeit R_q der Lage j :

$$r_{0,j}^{\text{RMS}} = r_{0,j} \cdot \exp \left(-8\pi^2 \left(\frac{R_q}{\lambda} \right)^2 N_j \cos \theta_j \right)$$

In Abbildung A.1 sind für eine $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur die simulierten ellipsometrischen Winkel dargestellt. Die Prädeposition, bei der die Depositionsleitungen gefüllt werden, zeigt sich im Signal durch den (konstanten) Beitrag des verwendeten SrTiO_3 Substrats.



Abb. A.1.: Darstellung der Benutzeroberfläche des selbst geschriebenen Simulationsprogramms für die Ellipsometrie. Beispielhaft ist die Ellipsometrie einer $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_{210}]_{10}$ Heterostruktur abgebildet.

Reziproke Raumkarten

In Abbildung B.1 und B.2 sind für eine 28,5(1) nm dicke $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur die aufgenommenen reziproken Raumkarten für verschiedene ($h03$) und ($h04$) Reflexe abgebildet. Aus der Lage des Probenreflex in Bezug zum Substrat kann das vollverspannte Wachstum der Heterostruktur nachgewiesen werden.

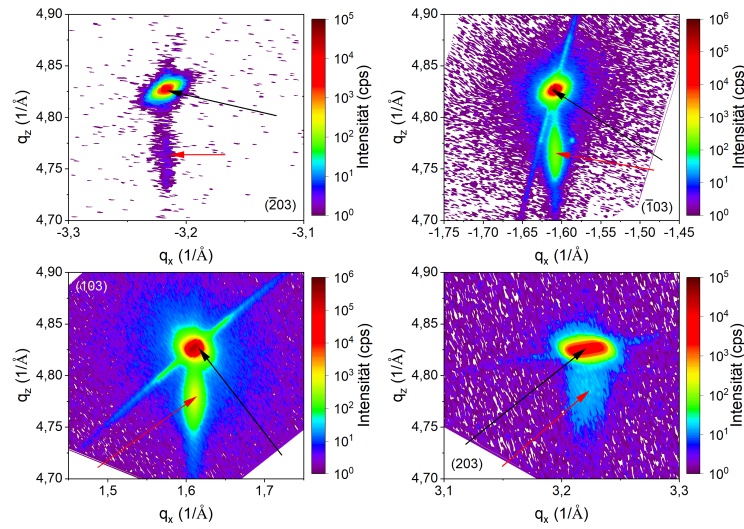


Abb. B.1.: Reziproke Raumkarten um verschiedene ($h03$) Reflexe einer $d=28,5(1)$ nm dicken $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur. Schwarze Pfeile markieren den SrTiO_3 Substratreflex und rote Pfeile den Reflex der Heterostruktur. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

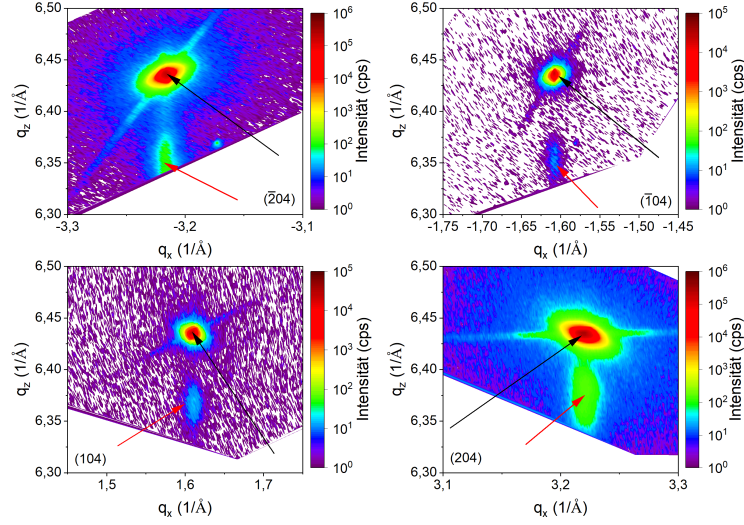


Abb. B.2.: Reziproke Raumkarten um verschiedene ($h04$) Reflexe einer $d=28,5(1)$ nm dicken $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur. Schwarze Pfeile markieren den SrTiO_3 Substratreflex und rote Pfeile den Reflex der Heterostruktur. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Für die Bestimmung der Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}}$ wird ein Schnitt durch die reziproke Raumkarte gelegt. Dieser verläuft dabei entlang der in-plane Komponente des zugehörigen q_x Werts des SrTiO_3 Substrats. Dies ist in Abbildung B.3

Tab. B.1.: Ermittelte out-of-plane Gitterkonstante aus den reziproken Raumkarten.

Reflex	q_z (\AA^{-1})	FWHM (\AA^{-1})	$d(001)_{\text{pc}}$ (\AA)	d_{min} (\AA)	d_{max} (\AA)
(001)	1,5888(1)	0,0221(7)	3,955(1)	3,982(1)	3,927(1)
(002)	3,18381(2)	0,028(1)	3,947(1)	3,964(1)	3,930(1)
($\bar{2}03$)	4,761(2)	0,056(6)	3,959(3)	3,983(5)	3,936(5)
($\bar{1}03$)	4,7652(2)	0,030(1)	3,956(3)	3,968(1)	3,943(1)
(003)	4,7686(2)	0,0222(7)	3,953(2)	3,962(1)	3,944(1)
(103)	4,77878(9)	0,0306(4)	3,945(1)	3,957(2)	3,932(4)
(203)	4,7902(7)	0,015(3)	3,935(9)	3,941(2)	3,929(2)
($\bar{2}04$)	6,3566(9)	0,027(3)	3,954(9)	3,962(2)	3,945(2)
($\bar{1}04$)	6,3536(4)	0,029(2)	3,956(4)	3,965(1)	3,947(1)
(004)	6,3615(1)	0,0261(4)	3,951(1)	3,959(2)	3,943(2)
(104)	6,3666(4)	0,0268(8)	3,948(2)	3,956(3)	3,939(1)
(204)	6,3774(3)	0,059(4)	3,941(3)	3,959(2)	3,923(2)

dargestellt. Mit einem Gauss-Fit lässt sich die out-of-plane Komponente q_z des Filmreflex und damit die Gitterkonstante $d(001)_{\text{pc}}$ bestimmen. Diese sind für die einzelnen reziproken Raumkarten in Tabelle B.1 aufgeführt. Zudem sind die minimalen (d_{min}) und maximalen (d_{max}) Werte für die Gitterkonstante aufgeführt. Berechnet man den Mittelwert der Gitterkonstante für alle reziproken Raumkarten ergibt sich für die $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur $d(001)_{\text{pc}} = 3,950 \text{ \AA}$.

In der reziproken Raumkarte um den symmetrischen (002) Reflex lassen sich unterhalb des Filmreflex zusätzliche Reflexe erkennen (siehe Abb. B.3(a)). Diese lassen sich auf Laue Oszillationen zurückführen, wie sie in Abbildung B.3(b) für den Schnitt der reziproken Raumkarte entlang $q_x = 0 \text{ \AA}^{-1}$ beobachtbar sind. Das Auftreten der Laue Oszillationen ist ein weiterer Hinweis auf die gute Probenqualität der gewachsenen Heterostrukturen.

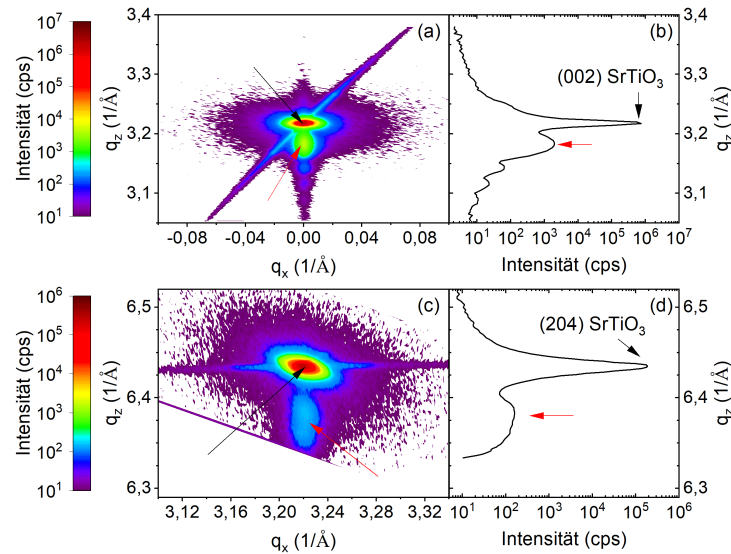


Abb. B.3.: *Links:* Reziproke Raumkarten einer $d=28,5(1) \text{ nm}$ dicken $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_{10}$ Heterostruktur um den (002) (a) und den (204) Reflex (d).

Rechts: Schnitt durch die reziproke Raumkarte entlang des q_x Werts auf dem der Substratpeak liegt: (b) Entlang $q_x = 0 \text{ \AA}^{-1}$ für den (002) Reflex. (d) Entlang $q_x = 3,218 \text{ \AA}^{-1}$ für den (204) Reflex.

Die Position des SrTiO₃ Reflex ist mit einem schwarzen Pfeil markiert und der Reflex der Heterostruktur durch rote Pfeile. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Symmetrische und asymmetrische Magnetotransport-Messungen

In Abbildung C.1 sind für vier Drehwinkel $\beta = 0^\circ$, $\beta = 40^\circ$, $\beta = 65^\circ$ und $\beta = 85^\circ$ die symmetrischen Hall-Effekt Messungen für verschiedene maximale Feldstärken dargestellt. Bei größeren Drehungen des Magnetfelds aus der Probennormalen heraus lassen sich deutliche Unterschiede für Magnetfelder $|\mu_0 H| = 1$ T und für $|\mu_0 H| \geq 2$ T beobachten. Bei den Messungen bei 1 T sieht man, dass nur von einem Leitungs kanal, der zum anomalen Hall-Effekt beiträgt, die Koerzitivfeldstärke H_c überschritten wurde und geschaltet hat. Asymmetrische Hall-Effekt Messungen im Feldbereich $\mu_0 H_{\min} \leq \mu_0 H \leq 5$ T, mit -6 T $\leq \mu_0 H_{\min} \leq -1$ T zeigen das gleiche Verhalten.

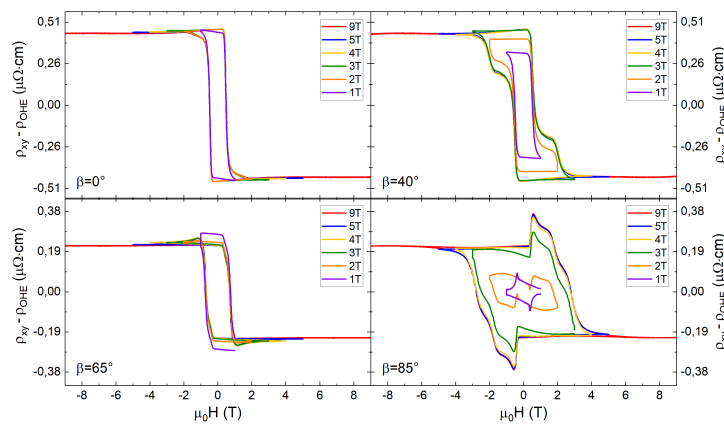


Abb. C.1.: Symmetrische Hall-Effekt Messungen für Drehung in der yz -Ebene mit verschiedenen maximalen Feldstärken. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

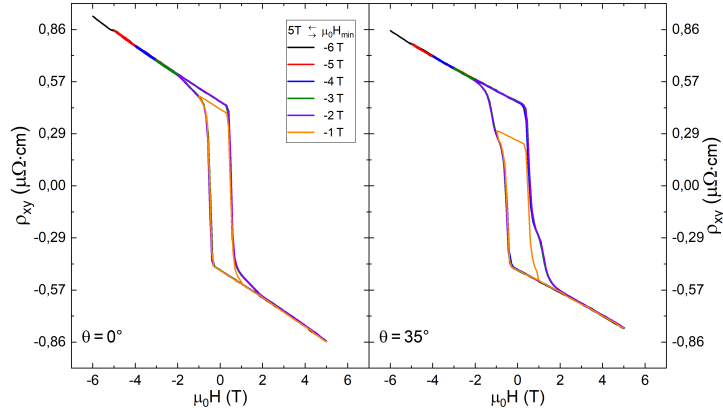


Abb. C.2.: Asymmetrische Hall-Effekt Messungen für Drehung in der xz -Ebene mit verschiedenen maximalen Feldstärken. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in $SrRuO_3$ - $SrIrO_3$ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Der in Abbildung C.3 dargestellte symmetrische Magnetwiderstand zeigt ab Magnetfelder $|\mu_0 H| \leq 2$ T den gleichen Kurvenverlauf. Bei 1 T dagegen hat sich der Beitrag des einen Leitungskanals noch nicht geändert, da von diesem das Koerzitivfeld, vergleichbar zu den Hall-Effekt Messungen, nicht überschritten worden ist. Dies führt zu einem leicht reduzierten Magnetwiderstand für die Messung mit einem Maximalfeld von 1 T. Im Feldbereich $2 \text{ T} \leq |\mu_0 H| \leq 6 \text{ T}$ zeigt der Magnetwiderstand einen linearen Verlauf. Ab 6 T nimmt die feldabhängige Änderung ab und scheint für Felder $\geq 9 \text{ T}$ zu sättigen.

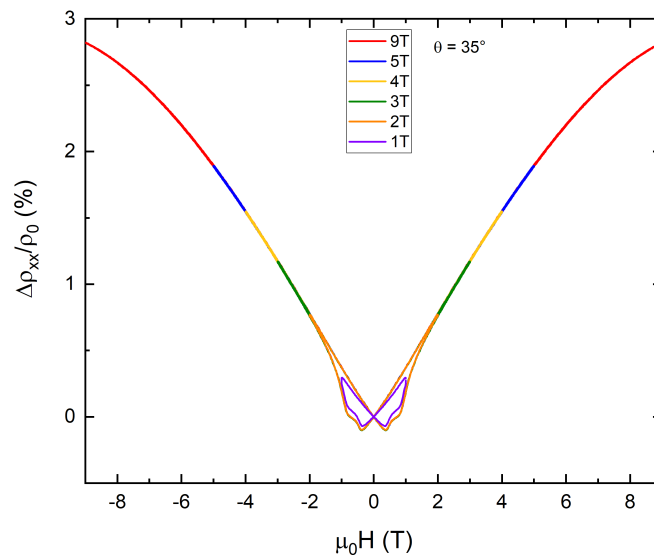


Abb. C.3.: Symmetrischer Magnetwiderstand für eine Drehung um $\theta = 35^\circ$ in der xz -Ebene mit verschiedenen Feldstärken.

DFT-Rechnungen

Für die DFT-Rechnungen der elektronischen und magnetischen Struktur einer $(\text{SrRuO}_3)_m/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostruktur wurde die Multilage durch Superzellen der Größe $2a \times 2a \times (m + 2)$ modelliert. Drehungen und Verkippungen der Oktaeder werden im Modell durch die Verwendung von zwei Plätzen für die Übergangsmetalle

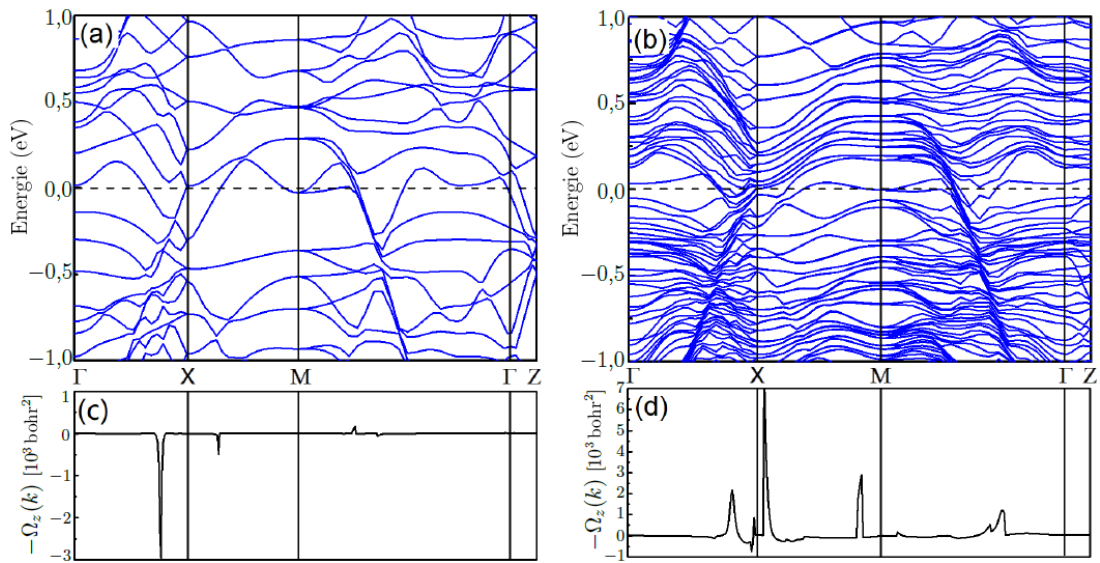


Abb. D.1.: Berechnete Bandstruktur von (001) orientierten SrRuO_3 (a) und einer $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostruktur (b) mit Spin-Bahn Kopplung entlang der [001]-Richtung.

Aus der Bandstruktur bestimmte Berry-Krümmung für SrRuO_3 (c) und für $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ (d) entlang derselben k -Richtungen (Symmetrierichtungen) wie in der dargestellten Bandstruktur. Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in SrRuO_3 - SrIrO_3 heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

tallionen (Ru oder Ir) pro Lage berücksichtigt. Die Rechnungen selbst wurden mit dem VASP Code und dem PBEsol Austauschkorrelationsfunktional durchgeführt. Lokale statische Korrelationseffekte werden durch die DFT+ U Ansatz in der Dudarev Implementierung berücksichtigt. Für Ru wurde dabei $U = 1,0$ eV und für Ir $U = 1,37$ eV und $J = 0,22$ eV verwendet. Für die Spin-Bahn Kopplung wurde die Magnetisierung entlang der [001]-Richtung angenommen.

Abbildung D.1 zeigt die berechnete Bandstruktur einer $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostruktur (Abb. D.1(b)) im Vergleich mit reinem SrRuO_3 (Abb. D.1(a)).

Bei der Heterostruktur lassen sich einige Merkmale der Bandstruktur von SrRuO_3 erkennen. Die einzelnen SrRuO_3 Schichten bewirken eine lagenabhängige Verschiebung der Bänder. Die Beiträge der einzelnen SrRuO_3 Lagen werden mit den Beiträgen von SrIrO_3 überlagert, wodurch es bei der Heterostruktur zu mehreren Bändern kommt, welche die Fermienergie kreuzen. Abb. D.2 zeigt die Beiträge der verschiedenen $5d$ -Orbitale des Iridiums und der $4d$ -Orbitale von Ruthenium in den unterschiedlichen Lagen der betrachteten Heterostruktur. Die dispersiven Bänder werden sowohl im SrRuO_3 als auch im SrIrO_3 durch die d_{xy} -Orbitale dominiert. In den SrRuO_3 Lagen im Bereich der Grenzfläche treten zudem flachere Bänder auf, die vornehmlich d_{xz} Charakter aufweisen.

In der berechneten Berry-Krümmung Ω_z des Bulk SrRuO_3 (Abb. D.1(c)) und der $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostruktur (Abb. D.1(d)) lassen sich mehrere Vorzeichenwechsel erkennen. Nach Gleichung (2.8) ist die anomale Hall-Leitfähigkeit proportional zur Berry-Krümmung. Tritt ein Vorzeichenwechsel in Ω_z auf, ändert sich damit auch das Vorzeichen der anomale Hall-Leitfähigkeit. Die Berechnungen wurden von Jiongyao Wu aus der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Rossitza Pentcheva der Universität Duisburg-Essen durchgeführt.

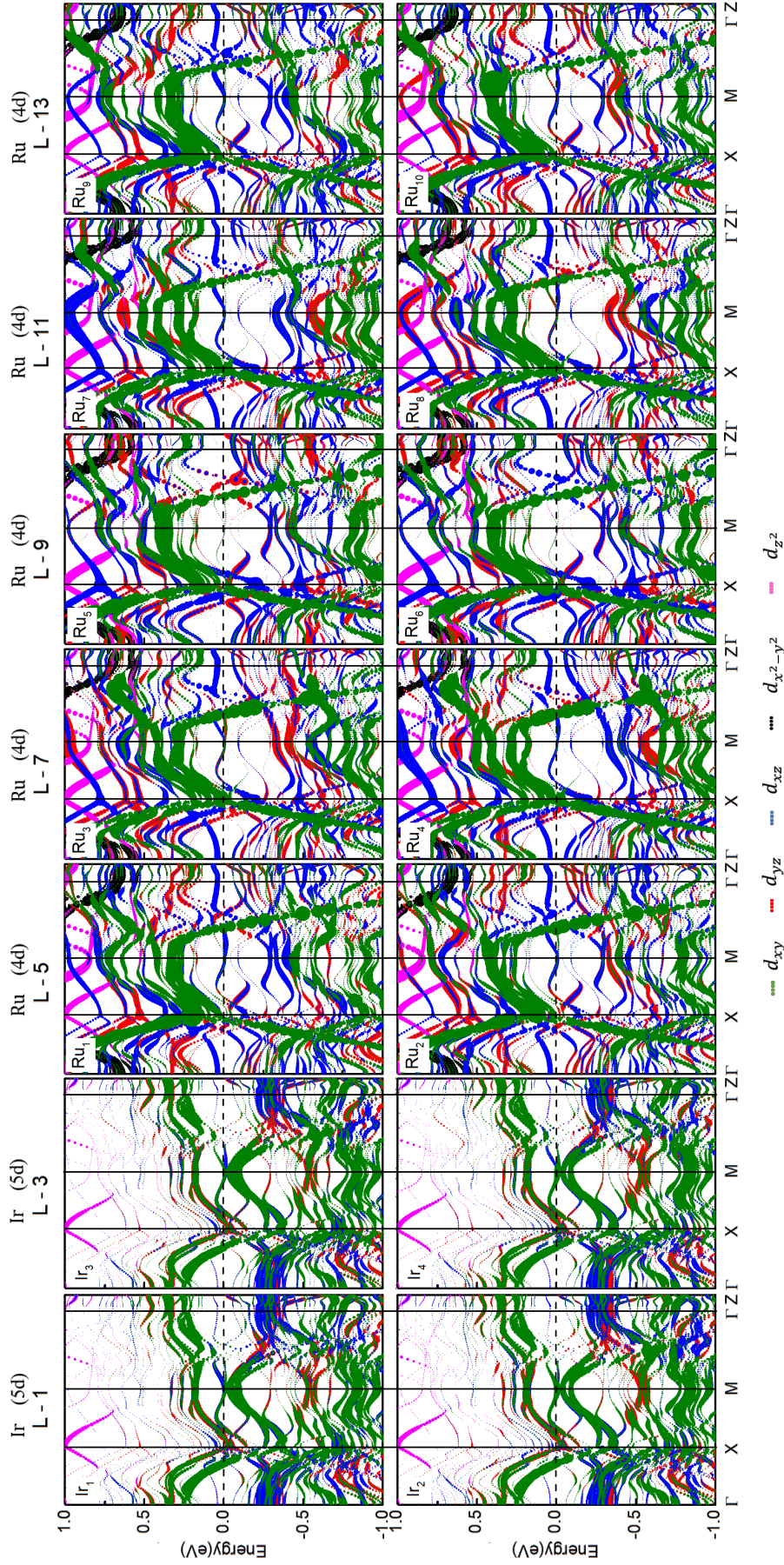


Abb. D.2.: Bandstruktur einer (001) orientierten $(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2$ Heterostruktur mit Spin-Bahn Kopplung entlang der [001]-Richtung für die unterschiedlichen Lagen. In einzelnen Lagen sind die Beiträge der Ir 5d- bzw. Ru 4d-Orbitale farblich dargestellt: d_{xy} (grün), d_{yz} (rot), d_{xz} (blau), $d_{x^2-y^2}$ (schwarz) und d_{z^2} (magenta). Abbildung nach Phys. Rev. B **103**, S. Esser *et al.*, *Angular dependence of Hall effect and magnetoresistance in $\text{SrRuO}_3\text{-SrIrO}_3$ heterostructures*, Copyright (2021) [221], mit Erlaubnis der American Physical Society.

Literaturverzeichnis

1. G. Koster, L. Klein, W. Siemons, G. Rijnders, J. S. Dodge, C.-B. Eom, D. H. A. Blank, und M. R. Beasley, *Structure, physical properties, and applications of SrRuO₃ thin films*, Rev. Mod. Phys., **84** (1):253, 2012.
2. T. C. van Thiel, D. J. Groenendijk, und A. D. Caviglia, *Extraordinary Hall balance in ultrathin SrRuO₃ bilayers*, J. Phys. Mater., **3** (2):025005, 2020.
3. L. Stiny, *Aktive elektronische Bauelemente*, Springer-Verlag GmbH, 2019, ISBN 3658247525.
4. H. Ibach, *Physics of Surfaces and Interface*, Springer Berlin Heidelberg, 2006, ISBN 978-3-540-34709-5.
5. H. Lüth, *Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films*, Springer, 2010, ISBN 978-3-642-13591-0.
6. Y. Wang, Q. He, W. Ming, M.-H. Du, N. Lu, C. Cafolla, J. Fujioka, Q. Zhang, D. Zhang, S. Shen, Y. Lyu, A. T. N'Diaye, E. Arenholz, L. Gu, C. Nan, Y. Tokura, S. Okamoto, und P. Yu, *Robust Ferromagnetism in Highly Strained SrCoO₃ Thin Films*, Phys. Rev. X, **10** (2):021030, 2020.
7. L. Maurel, N. Marcano, T. Prokscha, E. Langenberg, J. Blasco, R. Guzmán, A. Suter, C. Magén, L. Morellón, M. R. Ibarra, J. A. Pardo, und P. A. Algarabel, *Nature of antiferromagnetic order in epitaxially strained multiferroic SrMnO₃ thin films*, Phys. Rev. B, **92** (2):024419, 2015.
8. M. Keunecke, F. Lyzwa, D. Schwarzbach, V. Roddatis, N. Gauquelin, K. Müller-Caspary, J. Verbeeck, S. J. Callori, F. Klose, M. Jungbauer, und

- V. Moshnyaga, *High- T_C Interfacial Ferromagnetism in $\text{SrMnO}_3/\text{LaMnO}_3$ Superlattices*, Adv. Funct. Mater., **30** (18):1808270, 2019.
9. W. Kang, X. Chen, D. Zhu, S. Li, Y. Huang, Y. Zhang, und W. Zhao, *Magnetic skyrmions for future potential memory and logic applications: Alternative information carriers*, in *2018 Design, Automation & Test in Europe Conference & Exhibition (DATE)*, IEEE, 2018.
 10. S. Zhang, A. A. Baker, S. Komineas, und T. Hesjedal, *Topological computation based on direct magnetic logic communication*, Sci. Rep., **5** (1):15773, 2015.
 11. R. Tomasello, E. Martinez, R. Zivieri, L. Torres, M. Carpentieri, und G. Finocchio, *A strategy for the design of skyrmion racetrack memories*, Sci. Rep., **4** (1):6784, 2014.
 12. K. Everschor-Sitte, M. Sitte, T. Valet, A. Abanov, und J. Sinova, *Skyrmion production on demand by homogeneous DC currents*, New J. Phys., **19** (9):092001, 2017.
 13. T. Yokouchi, S. Hoshino, N. Kanazawa, A. Kikkawa, D. Morikawa, K. Shibata, T. hisa Arima, Y. Taguchi, F. Kagawa, N. Nagaosa, und Y. Tokura, *Current-induced dynamics of skyrmion strings*, Sci. Adv., **4** (8):eaat1115, 2018.
 14. D. Prychynenko, M. Sitte, K. Litzius, B. Krüger, G. Bourianoff, M. Kläui, J. Sinova, und K. Everschor-Sitte, *Magnetic Skyrmion as a Nonlinear Resistive Element: A Potential Building Block for Reservoir Computing*, Phys. Rev. Appl, **9** (1):014034, 2018.
 15. J. Zázvorka, F. Jakobs, D. Heinze, N. Keil, S. Kromin, S. Jaiswal, K. Litzius, G. Jakob, P. Virnau, D. Pinna, K. Everschor-Sitte, L. Rózsa, A. Donges, U. Nowak, und M. Kläui, *Thermal skyrmion diffusion used in a reshuffler device*, Nat. Nanotechnol., **14** (7):658, 2019.
 16. K. M. Song, J.-S. Jeong, B. Pan, X. Zhang, J. Xia, S. Cha, T.-E. Park, K. Kim, S. Finizio, J. Raabe, J. Chang, Y. Zhou, W. Zhao, W. Kang, H. Ju, und S. Woo, *Skyrmion-based artificial synapses for neuromorphic computing*, Nat. Electron., **3** (3):148, 2020.

17. J. Matsuno, N. Ogawa, K. Yasuda, F. Kagawa, W. Koshihara, N. Nagao-sa, Y. Tokura, und M. Kawasaki, *Interface-driven topological Hall effect in SrRuO_3 - SrIrO_3 bilayer*, Sci. Adv., **2** (7):e1600304, 2016.
18. P. J. Zakalek, *Magnetic interface effects in thin film heterostructures*, Doktorarbeit, RWTH Aachen, 2015.
19. A. Soumyanarayanan, N. Reyren, A. Fert, und C. Panagopoulos, *Emergent phenomena induced by spin-orbit coupling at surfaces and interfaces*, Nature, **539** (7630):509, 2016.
20. G. Finocchio, F. Büttner, R. Tomasello, M. Carpentieri, und M. Kläui, *Magnetic skyrmions: from fundamental to applications*, J. Phys. D: Appl. Phys., **49** (42):423001, 2016.
21. C. N. R. Rao, *Transition Metal Oxides*, Annu. Rev. Phys. Chem., **40** (1):291, 1989.
22. D. Ködderitzsch, *Beschreibung der elektronischen Struktur von Übergangs-metalloxiden mittels selbstwechselwirkungskorrigierter Dichtefunktionaltheo-rie: Volumenkristalle, Oberflächen und Punktdefekte*, Doktorarbeit, Mar-tin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, 2003.
23. W. Buckel, und R. Kleiner, *Supraleitung*, Wiley VCH Verlag GmbH, 2012, ISBN 978-3-527-41139-9.
24. R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, und K. Samwer, *Giant negative magnetoresistance in perovskite like $\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_x$ ferromagnetic films*, Phys. Rev. Lett., **71** (14):2331, 1993.
25. Y. Maeno, S. Kittaka, T. Nomura, S. Yonezawa, und K. Ishida, *Eva-luation of Spin-Triplet Superconductivity in Sr_2RuO_4* , J. Phys. Soc. Jpn., **81** (1):011009, 2012.
26. K. Soni, E. Yadav, S. Harisankar, und K. Mavani, *Influence of Ce doping and thickness on the structure and non-Fermi liquid behavior of LaNiO_3 thin films*, J. Phys. Chem. Solids, **141**:109398, 2020.
27. V. Eyert, *Octahedral Deformations and Metal-Insulator Transition in Transition Metal Chalcogenides*, Habilitationsschrift, Universität Augsburg, 1998.

28. H. Gretarsson, J. P. Clancy, X. Liu, J. P. Hill, E. Bozin, Y. Singh, S. Manni, P. Gegenwart, J. Kim, A. H. Said, D. Casa, T. Gog, M. H. Upton, H.-S. Kim, J. Yu, V. M. Katukuri, L. Hozoi, J. van den Brink, und Y.-J. Kim, *Crystal-Field Splitting and Correlation Effect on the Electronic Structure of $A_2\text{IrO}_3$* , Phys. Rev. Lett., **110** (7):076402, 2013.
29. T. Kondo, M. Nakayama, R. Chen, J. J. Ishikawa, E.-G. Moon, T. Yamamoto, Y. Ota, W. Malaeb, H. Kanai, Y. Nakashima, Y. Ishida, R. Yoshida, H. Yamamoto, M. Matsunami, S. Kimura, N. Inami, K. Ono, H. Kumigashira, S. Nakatsuji, L. Balents, und S. Shin, *Quadratic Fermi node in a 3D strongly correlated semimetal*, Nat. Commun., **6** (1):10042, 2015.
30. S. Blundell, *Magnetism in Condensed Matter*, Oxford University Press, 2001, ISBN 978-0-19-850591-4.
31. K. Momma, und F. Izumi, *VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data*, J. Appl. Crystallogr., **44** (6):1272, 2011.
32. ICDD, *PDF-4+ 2010 (Database)*, edited by Dr. Soorya Kabekkodu, International Centre for Diffraction Data, Newtown Square, PA, USA, 2010.
33. H. Jahn, und E. Teller, *Stability of Polyatomic Molecules in Degenerate Electronic States. I. Orbital Degeneracy*, Proc. R. Soc. Lond. A, **161** (905):220, 1937.
34. M. Sturge, *The Jahn-Teller Effect in Solids*, in *Solid State Physics*, 91–211, Elsevier, 1968.
35. B. R. K. Nanda, und S. Satpathy, *Effects of strain on orbital ordering and magnetism at perovskite oxide interfaces: $\text{LaMnO}_3/\text{SrMnO}_3$* , Phys. Rev. B, **78** (5):054427, 2008.
36. G. F. Dionne, *Magnetic Oxides*, Springer Nature, 2009, ISBN 978-1-4419-0053-1.
37. V. M. Goldschmidt, *Die Gesetze der Krystallochemie*, Die Naturwissenschaften, **14** (21):477, 1926.
38. A. Vailionis, H. Boschker, W. Siemons, E. P. Houwman, D. H. A. Blank, G. Rijnders, und G. Koster, *Misfit strain accommodation in epitaxial*

- ABO₃ perovskites: Lattice rotations and lattice modulations*, Phys. Rev. B, **83** (6):064101, 2011.
39. L.-S. Unger, *Phasenstabilisierung und Oberflächenaktivierung von Sauerstoffseparationsmembranen aus dotiertem Ba_{0,5}Sr_{0,5}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-d}*, Karlsruher Institut für Technologie, 2019, ISBN 3731508478.
 40. D. L. Smith, *Thin-film Deposition: Principles and Practice*, McGraw-Hill, 1995, ISBN 0071139133.
 41. J. A. Venables, *Atomic processes in crystal growth*, Surf. Sci., **299-300**:798, 1994.
 42. A. M. Visinoiu, *Growth mechanism and structure of epitaxial perovskite thin films and superlattices*, Doktorarbeit, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, 2003.
 43. S. Esser, *Verspannungsinduzierte Änderungen der elektronischen Eigenschaften von Sr₂CoIrO₆ Dünnschichten*, Doktorarbeit, Universität Augsburg, 2018.
 44. J. M. D. Coey, *Magnetism and Magnetic Materials*, Cambridge University Press, 2010, ISBN 0521816149.
 45. I. Dzyaloshinsky, *A thermodynamic theory of "weak" ferromagnetism of antiferromagnetics*, J. Phys. Chem. Solids, **4** (4):241, 1958.
 46. T. Moriya, *Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism*, Phys. Rev., **120** (1):91, 1960.
 47. T. Moriya, *New Mechanism of Anisotropic Superexchange Interaction*, Phys. Rev. Lett., **4** (5):228, 1960.
 48. K. V. Shanavas, und S. Satpathy, *Electronic structure and the origin of the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in MnSi*, Phys. Rev. B, **93** (19):195101, 2016.
 49. X. Ma, G. Yu, C. Tang, X. Li, C. He, J. Shi, K. L. Wang, und X. Li, *Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya Interaction: Effect of 5d Band Filling and Correlation with Spin Mixing Conductance*, Phys. Rev. Lett., **120** (15):157204, 2018.

50. S. Peng, D. Zhu, J. Zhou, B. Zhang, A. Cao, M. Wang, W. Cai, K. Cao, und W. Zhao, *Modulation of Heavy Metal/Ferromagnetic Metal Interface for High-Performance Spintronic Devices*, Adv. Electron. Mater., **5** (8):1900134, 2019.
51. A. Fert, und P. M. Levy, *Role of Anisotropic Exchange Interactions in Determining the Properties of Spin-Glasses*, Phys. Rev. Lett., **44** (23):1538, 1980.
52. I. F. Sharafullin, M. K. Kharrasov, und H. T. Diep, *Dzyaloshinskii-Moriya interaction in magnetoferroelectric superlattices: Spin waves and skyrmions*, Phys. Rev. B, **99** (21):214420, 2019.
53. K. H. J. Buschow, F. R. D. Boer, K. H. J. Buschow, und F. R. Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic Materials*, Springer US, 2003, ISBN 0306474212.
54. J. H. van Vleck, *On the Anisotropy of Cubic Ferromagnetic Crystals*, Phys. Rev., **52** (11):1178, 1937.
55. R. Gross, und A. Marx, *Festkörperphysik*, De Gruyter Oldenbourg, 2014, ISBN 978-3-11-035869-8.
56. E. C. Stoner, *Collective electron ferromagnetism II. Energy and specific heat*, Proc. R. Soc. Lond. A, **169** (938):339, 1939.
57. S. Schröder, *First-Principles Study of Non-Collinear Magnetism and Spin-Orbit Driven Physics in Nanostructures at Surfaces*, Doktorarbeit, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 2013.
58. A. Al-Zubi, *Ab initio investigations of magnetic properties of ultrathin transition-metal films on 4d substrates*, Band 16, Forschungszentrum Jülich GmbH, 2010, ISBN 978-3-89336-641-5.
59. N. Nagaosa, und Y. Tokura, *Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions*, Nat. Nanotechnol., **8** (12):899, 2013.
60. B. Göbel, *Emergent electrodynamics in non-collinear spin textures*, Doktorarbeit, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, 2020.
61. T. Yokouchi, *Magneto-transport Properties of Skyrmions and Chiral Spin Structures in MnSi*, Springer Science & Business Media, 2019, ISBN 9813293853.

62. S. Gao, H. D. Rosales, F. A. G. Albarracín, V. Tsurkan, G. Kaur, T. Fennell, P. Steffens, M. Boehm, P. Čermák, A. Schneidewind, E. Ressouche, D. C. Cabra, C. Rüegg, und O. Zaharko, *Fractional antiferromagnetic skyrmion lattice induced by anisotropic couplings*, Nature, **586** (7827):37, 2020.
63. A. K. Nayak, V. Kumar, T. Ma, P. Werner, E. Pippel, R. Sahoo, F. Damay, U. K. Rößler, C. Felser, und S. S. P. Parkin, *Magnetic antiskyrmions above room temperature in tetragonal Heusler materials*, Nature, **548** (7669):561, 2017.
64. M. Nagao, Y.-G. So, H. Yoshida, K. Yamaura, T. Nagai, T. Hara, A. Yamazaki, und K. Kimoto, *Experimental observation of multiple- Q states for the magnetic skyrmion lattice and skyrmion excitations under a zero magnetic field*, Phys. Rev. B, **92** (14):140415(R), 2015.
65. B. Göbel, I. Mertig, und O. A. Tretiakov, *Beyond skyrmions: Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles*, Physics Reports, **895**:1, 2021.
66. N. Gao, S. G. Je, M. Y. Im, J. W. Choi, M. Yang, Q. Li, T. Y. Wang, S. Lee, H. S. Han, K. S. Lee, W. Chao, C. Hwang, J. Li, und Z. Q. Qiu, *Creation and annihilation of topological meron pairs in in-plane magnetized films*, Nat. Commun., **10** (1):5603, 2019.
67. K.-W. Moon, J. Yoon, C. Kim, und C. Hwang, *Existence of in-Plane Magnetic Skyrmion and its Motion under Current Flow*, Phys. Rev. Appl., **12** (6):064054, 2019.
68. A. Fert, R. Asomoza, D. H. Sanchez, D. Spanjaard, und A. Friederich, *Magnetotransport properties of noble metals containing rare-earth impurities. I. Quadrupole scattering by rare-earth impurities in gold*, Phys. Rev. B, **16** (11):5040, 1977.
69. M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. V. Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, und J. Chazelas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, Phys. Rev. Lett., **61** (21):2472, 1988.

70. G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, und W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, Phys. Rev. B, **39** (7):4828, 1989.
71. M. Julliere, *Tunneling between ferromagnetic films*, Phys. Lett. A, **54** (3):225, 1975.
72. E. H. Hall, *On a New Action of the Magnet on Electric Currents*, Amer. J. Math., **2** (3):287, 1879.
73. V. Yu. Irkhin, und Yu. P. Irkhin, *Electronic structure, correlation effects and physical properties of d- and f-metals and their compounds*, Cambridge International Science Publishing Ltd, 2007, ISBN 978-1-904602-55-2.
74. J. Kondo, *Anomalous Hall Effect and Magnetoresistance of Ferromagnetic Metals*, Prog. Theor. Phys., **27** (4):772, 1962.
75. L. Berger, *Side-Jump Mechanism for the Hall Effect of Ferromagnets*, Phys. Rev. B, **2** (11):4559, 1970.
76. R. Karplus, und J. M. Luttinger, *Hall Effect in Ferromagnetics*, Phys. Rev., **95** (5):1154, 1954.
77. N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, und N. P. Ong, *Anomalous Hall effect*, Rev. Mod. Phys., **82**:1539, 2010.
78. Y. Shiomi, *Anomalous and Topological Hall Effects in Itinerant Magnets (Springer Theses)*, Springer Science & Business Media, 2013, ISBN 9784431543619.
79. A. Crépieux, und P. Bruno, *Theory of the anomalous Hall effect from the Kubo formula and the Dirac equation*, Phys. Rev. B, **64** (1):014416, 2001.
80. J. Smit, *The spontaneous hall effect in ferromagnetics I*, Physica, **21** (6-10):877, 1955.
81. J. Smit, *The spontaneous hall effect in ferromagnetics II*, Physica, **24** (1-5):39, 1958.
82. K. Everschor-Sitte, und M. Sitte, *Real-space Berry phases: Skyrmion soccer (invited)*, J. Appl. Phys., **115** (17):172602, 2014.

83. D. Xiao, M.-C. Chang, und Q. Niu, *Berry phase effects on electronic properties*, Rev. Mod. Phys., **82** (3):1959, 2010.
84. A. B. Pippard, *Magnetoresistance in Metals*, Cambridge University Press, 1989, ISBN 9780521326605.
85. N.F. Mott, *Electrons in transition metals*, Adv. Phys., **13** (51):325, 1964.
86. I.A. Campbell and A. Fert, in *Handbook of Ferromagnetic Materials*, 747–804, Elsevier, 1982.
87. W. Thomson, *XIX. On the electro-dynamic qualities of metals:—Effects of magnetization on the electric conductivity of nickel and of iron*, Proc. R. Soc. Lond., **8**:546, 1857.
88. T. McGuire, und R. Potter, *Anisotropic Magnetoresistance in Ferromagnetic 3d Alloys*, IEEE Transactions on Magnetics, **11** (4):1018, 1975.
89. J. Nickel, *Magnetoresistance Overview*, Hewlett-Packard Laboratories, Technical Publications Department, 1995.
90. R. R. Birss, *Symmetry and Magnetism*, North-Holland Pub. Co., 1966, ISBN 0720414539.
91. W. Limmer, M. Glunk, J. Daeubler, T. Hummel, W. Schoch, R. Sauer, C. Bihler, H. Huebl, M. S. Brandt, und S. T. B. Goennenwein, *Angle-dependent magnetotransport in cubic and tetragonal ferromagnets: Application to (001)- and (113)A-oriented (Ga,Mn)As*, Phys. Rev. B, **74** (20):205205, 2006.
92. R. F. Tinder, *Tensor Properties of Solids - Phenomenological Development of the Tensor Properties of Crystals*, Band 2, Morgan & Claypool Publishers LLC, 2007, ISBN 1598293486.
93. W. Limmer, J. Daeubler, L. Dreher, M. Glunk, W. Schoch, S. Schwaiger, und R. Sauer, *Advanced resistivity model for arbitrary magnetization orientation applied to a series of compressive- to tensile-strained (Ga,Mn)As layers*, Phys. Rev. B, **77** (20):205210, 2008.
94. J. Däubler, *Magnetische Anisotropie in GaMnAs*, Doktorarbeit, Universität Ulm, 2009.

95. M. Glunk, *Elektrische und magnetische Eigenschaften des verdünnten magnetischen Halbleiters (Ga,Mn)As*, Doktorarbeit, Universität Ulm, 2012.
96. M. Schneider, D. Geiger, S. Esser, U. Pracht, C. Stingl, Y. Tokiwa, V. Moshnyaga, I. Sheikin, J. Mravlje, M. Scheffler, und P. Gegenwart, *Low-Energy Electronic Properties of Clean CaRuO_3 : Elusive Landau Quasiparticles*, Phys. Rev. Lett., **112** (20):206403, 2014.
97. V. Moshnyaga, I. Khoroshun, A. Sidorenko, P. Petrenko, A. Weidinger, M. Zeitler, B. Rauschenbach, R. Tidecks, und K. Samwer, *Preparation of rare-earth manganite-oxide thin films by metalorganic aerosol deposition technique*, Appl. Phys. Lett., **74** (19):2842, 1999.
98. I. V. Khoroshun, E. V. Karyaeu, V. T. Moshnyaga, G. A. Kiosse, M. A. Krachun, V. M. Zakosarenko, und V. Y. Davydov, *Characteristics of epitaxial Y-Ba-Cu-O thin films grown by aerosol MOCVD technique*, Supercond. Sci. Technol., **3** (10):493, 1990.
99. M. Jungbauer, *Gestaltung der elektronischen Korrelationen in Perowskit-Heterostrukturen auf atomarer Skala*, Doktorarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2015.
100. M. Schneider, V. Moshnyaga, und P. Gegenwart, *Ferromagnetic quantum phase transition in $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{RuO}_3$ thin films*, Phys. Status Solidi B, **247** (3):577, 2010.
101. S. Hühn, *Kationen-Ordnung in ferri/ferromagnetischen perowskitischen Dünnschichten*, Doktorarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2015.
102. M. Jungbauer, S. Hühn, R. Egoavil, H. Tan, J. Verbeeck, G. V. Tendeloo, und V. Moshnyaga, *Atomic layer epitaxy of Ruddlesden-Popper $\text{SrO}(\text{SrTiO}_3)_n$ films by means of metalorganic aerosol deposition*, Appl. Phys. Lett., **105** (25):251603, 2014.
103. R. Tilley, *An electron microscope study of perovskite-related oxides in the Sr-Ti-O System*, J. Solid State Chem., **21** (4):293, 1977.
104. S. Hühn, M. Jungbauer, M. Michelmann, F. Massel, F. Koeth, C. Ballani, und V. Moshnyaga, *Modeling of colossal magnetoresistance in $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{Pr}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ superlattices: Comparison with individual $(\text{La}_{1-y}\text{Pr}_y)_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ films*, J. Appl. Phys., **113** (17):17D701, 2013.

105. O. Shapoval, S. Hühn, J. Verbeeck, M. Jungbauer, A. Belenchuk, und V. Moshnyaga, *Interface-controlled magnetism and transport of ultrathin manganite films*, J. Appl. Phys., **113** (17):17C711, 2013.
106. HiTec Zang GmbH, *SyrDos2-Spritzendosierer*, Originalbetriebsanleitung.
107. R. G. Bankras, *In-situ RHEED and characterization of ALD Al_2O_3 gate dielectrics*, Doktorarbeit, University of Twente, 2006.
108. G. J. H. M. Rijnders, G. Koster, D. H. A. Blank, und H. Rogalla, *In situ monitoring during pulsed laser deposition of complex oxides using reflection high energy electron diffraction under high oxygen pressure*, Appl. Phys. Lett., **70** (14):1888, 1997.
109. H. Fujiwara, *Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications*, John Wiley & Sons Ltd, 2007, ISBN 978-0-470-01608-4.
110. A. Furchner, *Spectroscopic infrared ellipsometry on functional polymer films*, Doktorarbeit, Technische Universität Berlin, 2014.
111. F. Lyzwa, P. Marsik, V. Roddatis, C. Bernhard, M. Jungbauer, und V. Moshnyaga, *In situ monitoring of atomic layer epitaxy via optical ellipsometry*, J. Phys. D: Appl. Phys., **51** (12):125306, 2018.
112. T. Bastuck, *In situ-Untersuchung von organisch/anorganischen Grenzflächen mit spektraler Ellipsometrie*, Doktorarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2003.
113. R. M. A. Azzam, M. Elshazly-Zaghloul, und N. M. Bashara, *Combined reflection and transmission thin-film ellipsometry: a unified linear analysis*, Appl. Opt., **14** (7):1652, 1975.
114. R. Mandal, M. Hirsbrunner, V. Roddatis, R. Gruhl, L. Schüler, U. Roß, S. Merten, P. Gegenwart, und V. Moshnyaga, *Strain-driven structure-ferroelectricity relationship in hexagonal $TbMnO_3$ films*, Phys. Rev. B, **102** (10):104106, 2020.
115. T. C. Fujita, Y. Kozuka, M. Uchida, A. Tsukazaki, T. Arima, und M. Kawasaki, *Odd-parity magnetoresistance in pyrochlore iridate thin films with broken time-reversal symmetry*, Sci. Rep., **5** (1):9711, 2015.

116. Edwards Limited, *XDS-Trockenpumpe*, 2010, Betriebsanleitung.
117. Pfeiffer Vacuum GmbH, *Compact FullRange Gauge PKR251*, Operating Instructions.
118. Pfeiffer Vacuum GmbH, *Total Pressure Gauge Controller TPG 300*, Operating Instructions.
119. MKS Instruments Deutschland GmbH, *Type GE50A ELASTOMER SEALED, DIGITAL MASS FLOW CONTROLLER*, Datenblatt.
120. MKS Instruments Deutschland GmbH, *PR 400B-F 2 Channel Power Supply and Readout for Flow and Pressure*, Edition 2015-01, Instruction Manual.
121. K. Samwer, V. Mosneaga, A. Belenciuc, und O. Sapoval, *Aerosolerzeugerdüse, Aerosolerzeugersystem, Beschichtungssystem und Verfahren*, 30. Dezember 2007, Patent DE102007055936B4.
122. Lumentum Operations LLC, *Manual - Helium-Neon Laser Heads 1100 Series*.
123. Thorlabs Inc., *Datenblatt Glan-Thompson Polarizer*.
124. Hinds-Instruments Inc., *Datenblatt PEM-100 Controller*.
125. Hinds-Instruments Inc., *Datenblatt DET-200*.
126. Keithley Instruments, Inc., *Model 2000 Multimeter User's Manual*, 1994.
127. Stanford Research Systems, *Model SR830 DSP Lock-In Amplifier*, 1993.
128. LumaSense Technologies, Inc., *Betriebsanleitung IMPAC Pyrometer IGA 140/23*.
129. M. Birkholz, *Thin Film Analysis by X-Ray Scattering*, Wiley-VCH, 2005, ISBN 978-3-527-31052-4.
130. D. M. Jens Als-Nielsen, *Elements of Modern X-Ray Physics*, zweite Auflage, A John Wiley & Sons, 2011, ISBN 978-0-470-97395-0.
131. Philips Analytical, Inc., *X'Pert-MPD User's Manual*.
132. Malvern Panalytical GmbH, *Empyrean Series 2 User's Guide*.

133. J. C. M. Brentano, *Parafocusing Properties of Microcrystalline Powder Layers in X-Ray Diffraction Applied to the Design of X-Ray Goniometers*, J. Appl. Phys., **17** (6):420, 1946.
134. E. Prince (Herausgeber), *International Tables for Crystallography, Volume C: Mathematical, Physical and Chemical Tables*, Springer, 2004, ISBN 978-1-4020-1900-5.
135. H. Kiessig, *Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten*, Ann. Phys., **402** (7):769, 1931.
136. S. Macke, und E. Goering, *Magnetic reflectometry of heterostructures*, J. Phys.: Condens. Matter, **26** (36):363201, 2014.
137. L. G. Parratt, *Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays*, Phys. Rev., **95** (2):359, 1954.
138. C. Chantler, K. Olsen, R. Dragoset, J. Chang, A. Kishore, S. Kotochigova, und D. Zucker, *Detailed Tabulation of Atomic Form Factors, Photoelectric Absorption and Scattering Cross Section, and Mass Attenuation Coefficients for Z=1-92 from E=1-10 eV to E=0.4-10 MeV*, 1997.
139. L. Névot, und P. Croce, *Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons X. Application à l'étude du polissage de quelques verres silicates*, Rev. Phys. Appl., **15** (3):761, 1980.
140. H. Fitouri, M. M. Habchi, und A. Rebey, *High-Resolution X-Ray Diffraction of III-V Semiconductor Thin Films*, in *X-ray Scattering*, InTech, 2017.
141. T. Baumbach, V. Holý, und U. Pietsch, *High-Resolution X-Ray Scattering*, Springer New York, 2011, ISBN 978-1-4419-2307-3.
142. A.-C. Swertz, *Elektronenmikroskopische Untersuchungen an mehrschichtigen Nanopartikeln*, Doktorarbeit, Bergische Universität Wuppertal, 2017.
143. G. Binnig, C. F. Quate, und C. Gerber, *Atomic Force Microscope*, Phys. Rev. Lett., **56** (9):930, 1986.
144. J. Thomas, und T. Gemming, *Analytische Transmissionselektronenmikroskopie*, Springer-Verlag KG, 2013, ISBN 978-3-7091-1439-1.

145. P. J. Goodhew, F. J. Humphreys, und R. Beanland, *Electron microscopy and analysis*, Taylor & Francis, London, 2001, ISBN 978-0748409686.
146. Carl Zeiss AG, *Zeiss Crossbeam Family - Produktinformation*.
147. Thermo Fisher Scientific, *Titan Themis*.
148. P. Hartel, H. Rose, und C. Dinges, *Conditions and reasons for incoherent imaging in STEM*, Ultramicroscopy, **63** (2):93, 1996.
149. S. Pennycook, *Structure determination through Z-contrast microscopy*, Adv. Imag. Elect. Phys., **23**:173, 2002.
150. Quantum Design, *Magnetic Property Measurement System MPMS 3 User's Manual*.
151. C. Enss, und S. Hunklinger, *Tieftemperaturphysik*, Springer Berlin Heidelberg, 2000, ISBN 978-3-642-57265-4.
152. Quantum Design, *MPMS Application Note 1014-213*.
153. M. Khalid, A. Setzer, M. Ziese, P. Esquinazi, D. Spemann, A. Pöpl, und E. Goering, *Ubiquity of ferromagnetic signals in common diamagnetic oxide crystals*, Phys. Rev. B, **81** (21):214414, 2010.
154. Maximilian Seidler, *Optimierung der Datenanalyse für SQUID-Magnetometrie*, Bachelorarbeit, Universität Augsburg, 2018.
155. Quantum Design, *Physical Property Measurement System Hardware Manual*.
156. Quantum Design, *Electrical Transport Option (ETO) User's Manual*.
157. Quantum Design, *Physical Property Measurement System Horizontal Rotator Option User's Manual*.
158. S. Meir, *Übergabereport Projekt Schattenmasken*, Universität Augsburg, 2013 (unveröffentlicht).
159. B. Meir, *BaBiO₃/BaPbO₃-Bilagen: Herstellung und Untersuchung elektronischer Grenzflächeneffekte*, Doktorarbeit, Universität Augsburg, 2019.

160. J. Grollier, D. Querlioz, K. Y. Camsari, K. Everschor-Sitte, S. Fukami, and M. D. Stiles, *Neuromorphic spintronics*, Nat. Electron., **3**:360, 2020.
161. Y. Li, L. Zhang, Q. Zhang, C. Li, T. Yang, Y. Deng, L. Gu, and D. Wu, *Emergent Topological Hall Effect in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrIrO}_3$ Heterostructures*, ACS Appl. Mater. Interfaces, **11** (23):21268, 2019.
162. L. Wang, Q. Feng, Y. Kim, R. Kim, K. H. Lee, S. D. Pollard, Y. J. Shin, H. Zhou, W. Peng, D. Lee, W. Meng, H. Yang, J. H. Han, M. Kim, Q. Lu, and T. W. Noh, *Ferroelectrically tunable magnetic skyrmions in ultrathin oxide heterostructures*, Nat. Mater., **17** (12):1087, 2018.
163. J. Jiang, and X. Pan, *Structural phase transitions in epitaxial SrRuO_3 thin films*, Philos. Mag. Lett., **80** (5):271, 2000.
164. H.-T. Jeng, S.-H. Lin, and C.-S. Hsue, *Orbital Ordering and Jahn-Teller Distortion in Perovskite Ruthenate SrRuO_3* , Phys. Rev. Lett., **97** (6):067002, 2006.
165. S. Agrestini, Z. Hu, C.-Y. Kuo, M. W. Haverkort, K.-T. Ko, N. Hollmann, Q. Liu, E. Pellegrin, M. Valdivares, J. Herrero-Martin, P. Gargiani, P. Gegenwart, M. Schneider, S. Esser, A. Tanaka, A. C. Komarek, and L. H. Tjeng, *Electronic and spin states of SrRuO_3 thin films: An x-ray magnetic circular dichroism study*, Phys. Rev. B, **91** (7):075127, 2015.
166. J. Okamoto, T. Okane, Y. Saitoh, K. Terai, S.-I. Fujimori, Y. Muramatsu, K. Yoshii, K. Mamiya, T. Koide, A. Fujimori, Z. Fang, Y. Takeda, and M. Takanaka, *Soft x-ray magnetic circular dichroism study of $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_3$ across the ferromagnetic quantum phase transition*, Phys. Rev. B, **76** (18):184441, 2007.
167. D. J. Singh, *Electronic and magnetic properties of the 4d itinerant ferromagnet SrRuO_3* , J. Appl. Phys., **79** (8):4818, 1996.
168. M. Ziese, I. Vrejoiu, and D. Hesse, *Structural symmetry and magnetocrystalline anisotropy of SrRuO_3 films on SrTiO_3* , Phys. Rev. B, **81** (18):184418, 2010.
169. Y. K. Wakabayashi, T. Otsuka, Y. Krockenberger, H. Sawada, Y. Taniyasu, and H. Yamamoto, *Machine-learning-assisted thin-film growth: Bayesian*

optimization in molecular beam epitaxy of SrRuO₃ thin films, APL Mater., **7** (10):101114, 2019.

170. R. D. Wulandari, S. Muhammady, und Y. Darma, *Tuning spin state of Ru⁴⁺ ion and Jahn-Teller distortion in cubic SrRuO₃ system by controlling in-plane strain: A first-principle study*, J. Phys. Chem. Solids, **137**:109225, 2020.
171. M. Izumi, K. Nakazawa, Y. Bando, Y. Yoneda, und H. Terauchi, *Magnetotransport of SrRuO₃ Thin Film on SrTiO₃ (001)*, J. Phys. Soc. Jpn., **66** (12):3893, 1997.
172. Z. Fang, N. Nagaosa, K. S. Takahashi, A. Asamitsu, R. Mathieu, T. Ogasawara, H. Yamada, M. Kawasaki, Y. Tokura, und K. Terakura, *The Anomalous Hall Effect and Magnetic Monopoles in Momentum Space*, Science, **302** (5642):92, 2003.
173. T. Miyasato, N. Abe, T. Fujii, A. Asamitsu, S. Onoda, Y. Onose, N. Nagaosa, und Y. Tokura, *Crossover Behavior of the Anomalous Hall Effect and Anomalous Nernst Effect in Itinerant Ferromagnets*, Phys. Rev. Lett., **99** (8):086602, 2007.
174. S. C. Gausepohl, M. Lee, R. A. Rao, und C. B. Eom, *Hall-effect sign reversal in CaRuO₃ and SrRuO₃ thin films*, Phys. Rev. B, **54** (13):8996, 1996.
175. N. Haham, Y. Shperber, M. Schultz, N. Naftalis, E. Shimshoni, J. W. Reiner, und L. Klein, *Scaling of the anomalous Hall effect in SrRuO₃*, Phys. Rev. B, **84** (17):174439, 2011.
176. M. Ziese, und I. Vrejoiu, *Anomalous and planar Hall effect of orthorhombic and tetragonal SrRuO₃ layers*, Phys. Rev. B, **84** (10):104413, 2011.
177. D. Roy, N. Haham, J. W. Reiner, E. Shimshoni, und L. Klein, *Intermixing of ordinary and anomalous Hall effect in SrRuO₃*, Phys. Rev. B, **92** (23):235101, 2015.
178. K. Ishigami, K. Yoshimatsu, D. Toyota, M. Takizawa, T. Yoshida, G. Shibata, T. Harano, Y. Takahashi, T. Kadono, V. K. Verma, V. R. Singh, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, H. Yamagami, T. Koide, M. Oshima, H. Kumigashira, und A. Fujimori, *Thickness-dependent magnetic properties and*

- strain-induced orbital magnetic moment in SrRuO₃ thin films*, Phys. Rev. B, **92** (6):064402, 2015.
179. A. Grutter, F. Wong, E. Arenholz, M. Liberati, A. Vailionis, and Y. Suzuki, *Enhanced magnetism in epitaxial SrRuO₃ thin films*, Appl. Phys. Lett., **96** (8):082509, 2010.
 180. W. Lu, W. Song, P. Yang, J. Ding, G. M. Chow, and J. Chen, *Strain Engineering of Octahedral Rotations and Physical Properties of SrRuO₃ Films*, Sci. Rep., **5** (1):10245, 2015.
 181. O. Morán, W. Saldarriaga, and E. Baca, *Presence of in-plane anisotropy and oscillatory magnetoresistive behavior in epitaxial SrRuO₃ thin films with orthogonal equivalent axes*, Solid State Sci., **11** (7):1187, 2009.
 182. M. Bibes, B. Martínez, J. Fontcuberta, V. Trtik, F. Benitez, C. Ferrater, F. Sánchez, and M. Varela, *Magnetoresistance at artificial interfaces in the itinerant SrRuO₃ ferromagnet*, Phys. Rev. B, **60** (13):9579, 1999.
 183. R. Gunnarsson, *Anisotropic spin-orbit interaction revealed by in-plane magnetoresistance in single-oriented SrRuO₃ thin films*, Phys. Rev. B, **85** (23):235409, 2012.
 184. K. Takiguchi, Y. K. Wakabayashi, H. Irie, Y. Krockenberger, T. Otsuka, H. Sawada, S. A. Nikolaev, H. Das, M. Tanaka, Y. Taniyasu, and H. Yamamoto, *Quantum transport evidence of Weyl fermions in an epitaxial ferromagnetic oxide*, Nat. Commun., **11** (1):4969, 2020.
 185. X. Shen, X. Qiu, D. Su, S. Zhou, A. Li, and D. Wu, *Thickness-dependent metal-insulator transition in epitaxial SrRuO₃ ultrathin films*, J. Appl. Phys., **117** (1):015307, 2015.
 186. D. Toyota, I. Ohkubo, H. Kumigashira, M. Oshima, T. Ohnishi, M. Lippmaa, M. Kawasaki, and H. Koinuma, *Ferromagnetism stabilization of ultrathin SrRuO₃ films: Thickness-dependent physical properties*, J. Appl. Phys., **99** (8):08N505, 2006.
 187. A. Huang, S.-H. Hung, and H.-T. Jeng, *Strain Induced Metal–Insulator Transition of Magnetic SrRuO₃ Single Layer in SrRuO₃/SrTiO₃ Superlattice*, Appl. Sci., **8** (11):2151, 2018.

188. Y. J. Chang, C. H. Kim, S.-H. Phark, Y. S. Kim, J. Yu, und T. W. Noh, *Fundamental Thickness Limit of Itinerant Ferromagnetic SrRuO₃ Thin Films*, Phys. Rev. Lett., **103** (5):057201, 2009.
189. H. Boschker, T. Harada, T. Asaba, R. Ashoori, A. Boris, H. Hilgenkamp, C. Hughes, M. Holtz, L. Li, D. Muller, H. Nair, P. Reith, X. R. Wang, D. Schlom, A. Soukiassian, und J. Mannhart, *Ferromagnetism and Conductivity in Atomically Thin SrRuO₃*, Phys. Rev. X, **9** (1):011027, 2019.
190. G. Herranz, F. Sánchez, B. Martínez, C. Ferrater, M. García-Cuenca, M. Varela, und J. Fontcuberta, *Magnetoresistance of SrRuO₃ ultra-thin films*, J. Magn. Magn. Mater., **290-291**:1123, 2005.
191. L. Pan, und G. Zhu (Herausgeber), *Perovskite Materials*, IntechOpen, 2016, ISBN 9535122452.
192. A. Biswas, und Y. H. Jeong, *Growth and engineering of perovskite SrIrO₃ thin films*, Curr. Appl Phys., **17** (5):605, 2017.
193. Y. K. Kim, A. Sumi, K. Takahashi, S. Yokoyama, S. Ito, T. Watanabe, K. Akiyama, S. Kaneko, K. Saito, und H. Funakubo, *Metalorganic Chemical Vapor Deposition of Epitaxial Perovskite SrIrO₃ Films on (100) SrTiO₃ Substrates*, Jpn. J. Appl. Phys., **45** (1):L36, 2005.
194. L. Zhang, Y. B. Chen, B. Zhang, J. Zhou, S. Zhang, Z. Gu, S. Yao, und Y. Chen, *Sensitively Temperature-Dependent Spin–Orbit Coupling in SrIrO₃ Thin Films*, J. Phys. Soc. Jpn., **83** (5):054707, 2014.
195. S. G. Bhat, N. K. Sebastian, und P. A. Kumar, *Influence of deposition conditions on the nature of epitaxial SrIrO₃ on STO (001)*, Physica B, **536**:614, 2018.
196. D. Groenendijk, C. Autieri, J. Girovsky, M. C. Martinez-Velarte, N. Manca, G. Mattoni, A. Monteiro, N. Gauquelin, J. Verbeeck, A. Otte, M. Gabay, S. Picozzi, und A. Caviglia, *Spin-Orbit Semimetal SrIrO₃ in the Two-Dimensional Limit*, Phys. Rev. Lett., **119** (25), 2017.
197. J. H. Gruenewald, J. Nichols, J. Terzic, G. Cao, J. W. Brill, und S. S. Seo, *Compressive strain-induced metal–insulator transition in orthorhombic SrIrO₃ thin films*, J. Mater. Res., **29** (21):2491, 2014.

198. K. R. Kleindienst, K. Wolff, J. Schubert, R. Schneider, und D. Fuchs, *Structural properties and anisotropic electronic transport in SrIrO₃ films*, Phys. Rev. B, **98** (11):115113, 2018.
199. J. Matsuno, K. Ihara, S. Yamamura, H. Wadati, K. Ishii, V. Shankar, H.-Y. Kee, und H. Takagi, *Engineering a Spin-Orbital Magnetic Insulator by Tailoring Superlattices*, Phys. Rev. Lett., **114** (24):247209, 2015.
200. P. Zubko, S. Gariglio, M. Gabay, P. Ghosez, und J.-M. Triscone, *Interface Physics in Complex Oxide Heterostructures*, Annu. Rev. Condens. Matter Phys., **2** (1):141, 2011.
201. M. Zhong (Herausgeber), *Epitaxy*, IntechOpen, 2018, ISBN 978-953-51-3889-1.
202. C. Richter, *Experimental Investigation of Electronic and Magnetic Properties of LaAlO₃-SrTiO₃ Interfaces*, Doktorarbeit, Universität Augsburg, 2013.
203. D. Yi, N. Lu, X. Chen, S. Shen, und P. Yu, *Engineering magnetism at functional oxides interfaces: manganites and beyond*, J. Phys.: Condens. Matter, **29** (44):443004, 2017.
204. S. Bhowal, und S. Satpathy, *Electronic structure and anomalous Hall effect in the ferromagnetic 3d-5d superlattice SrMnO₃/SrIrO₃*, Phys. Rev. B, **99** (24):245145, 2019.
205. N. Nakagawa, H. Y. Hwang, und D. A. Muller, *Why some interfaces cannot be sharp*, Nat. Mater., **5** (3):204, 2006.
206. Y. Wang, *Functional two-dimensional electronic gases at interfaces of oxide heterostructures*, Doktorarbeit, University of Nebraska-Lincoln, 2011.
207. Y. Ohuchi, J. Matsuno, N. Ogawa, Y. Kozuka, M. Uchida, Y. Tokura, und M. Kawasaki, *Electric-field control of anomalous and topological Hall effects in oxide bilayer thin films*, Nat. Commun., **9** (1):213, 2018.
208. B. Pang, L. Zhang, Y. B. Chen, J. Zhou, S. Yao, S. Zhang, und Y. Chen, *Spin-Glass-Like Behavior and Topological Hall Effect in SrRuO₃/SrIrO₃ Superlattices for Oxide Spintronics Applications*, ACS Appl. Mater. Interfaces, **9** (3):3201, 2017.

209. K.-Y. Meng, A. S. Ahmed, M. Baćani, A.-O. Mandru, X. Zhao, N. Bagués, B. D. Esser, J. Flores, D. W. McComb, H. J. Hug, und F. Yang, *Observation of Nanoscale Skyrmions in SrIrO₃/SrRuO₃ Bilayers*, Nano Lett., **19** (5):3169, 2019.
210. B. Sohn, B. Kim, S. Y. Park, H. Y. Choi, J. Y. Moon, T. Choi, Y. J. Choi, T. W. Noh, H. Zhou, S. H. Chang, J. H. Han, und C. Kim, *Emergence of robust 2D skyrmions in SrRuO₃ ultrathin film without the capping layer*, ArXiv e-prints, 2018, 1810.01615.
211. Q. Qin, L. Liu, W. Lin, X. Shu, Q. Xie, Z. Lim, C. Li, S. He, G. M. Chow, und J. Chen, *Emergence of Topological Hall Effect in a SrRuO₃ Single Layer*, Adv. Mater., **31** (8):1807008, 2019.
212. Y. Gu, Y.-W. Wei, K. Xu, H. Zhang, F. Wang, F. Li, M. S. Saleem, C.-Z. Chang, J. Sun, C. Song, J. Feng, X. Zhong, W. Liu, Z. Zhang, J. Zhu, und F. Pan, *Interfacial oxygen-octahedral-tilting-driven electrically tunable topological Hall effect in ultrathin SrRuO₃ films*, J. Phys. D: Appl. Phys., **52** (40):404001, 2019.
213. W. Wang, *Topological phenomena in magnetic thin films*, Doktorarbeit, Rutgers, The State University of New Jersey, 2018.
214. B. Sohn, B. Kim, J. W. Choi, S. H. Chang, J. H. Han, und C. Kim, *Hump-like structure in Hall signal from ultra-thin SrRuO₃ films without inhomogeneous anomalous Hall effect*, Curr. Appl Phys., **20** (1):186, 2020.
215. D. Groenendijk, *Spin-orbit coupling and geometric phases at oxide interfaces*, Doktorarbeit, Delft University of Technology, 2019.
216. D. Kan, T. Moriyama, K. Kobayashi, und Y. Shimakawa, *Alternative to the topological interpretation of the transverse resistivity anomalies in SrRuO₃*, Phys. Rev. B, **98** (18):180408(R), 2018.
217. G. Kimbell, P. M. Sass, B. Woltjes, E. K. Ko, T. W. Noh, W. Wu, und J. W. A. Robinson, *Two-channel anomalous Hall effect in SrRuO₃*, Phys. Rev. Mater., **4** (5):054414, 2020.
218. L. Wang, Q. Feng, H. G. Lee, E. K. Ko, Q. Lu, und T. W. Noh, *Controllable Thickness Inhomogeneity and Berry Curvature Engineering of Anomalous Hall Effect in SrRuO₃ Ultrathin Films*, Nano Lett., **20** (4):2468, 2020.

219. L. Wysocki, J. Schöpf, M. Ziese, L. Yang, A. Kovács, L. Jin, R. B. Vers-
teeg, A. Bliesener, F. Gunkel, L. Kornblum, R. Dittmann, P. H. M. van
Loosdrecht, und I. Lindfors-Vrejoiu, *Electronic Inhomogeneity Influence on
the Anomalous Hall Resistivity Loops of SrRuO₃ Epitaxially Interfaced with
5d Perovskites*, ACS Omega, **5** (11):5824, 2020.
220. M. Srba, *Mikrostruktur und elektrischer Transport von Sr_{1-x}Ca_xRuO₃-
Dünnschichten - Der Weg zur Aufdeckung des Fermiflüssigkeitsgrundzustandes
in CaRuO₃*, Doktorarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2018.
221. S. Esser, J. Wu, S. Esser, R. Gruhl, A. Jesche, V. Roddatis, V. Moshnya-
ga, R. Pentcheva, und P. Gegenwart, *Angular dependence of Hall effect
and magnetoresistance in SrRuO₃-SrIrO₃ heterostructures*, Phys. Rev. B,
103 (21):214430, 2021.
222. M. A. L. de la Torre, Z. Sefrioui, D. Arias, M. Varela, J. E. Villegas, C. Bal-
lesteros, C. León, und J. Santamaría, *Electron-electron interaction and weak
localization effects in badly metallic SrRuO₃*, Phys. Rev. B, **63** (5):052403,
2001.
223. A. O. Leonov, und I. Kézsmárki, *Skyrmion robustness in noncentrosymme-
tric magnets with axial symmetry: The role of anisotropy and tilted magnetic
fields*, Phys. Rev. B, **96** (21):214413, 2017.
224. T. Yokouchi, N. Kanazawa, A. Tsukazaki, Y. Kozuka, M. Kawasaki, M. Ichi-
kawa, F. Kagawa, und Y. Tokura, *Stability of two-dimensional skyrmions
in thin films of Mn_{1-x}Fe_xSi investigated by the topological Hall effect*, Phys.
Rev. B, **89** (6):064416, 2014.
225. B. Göbel, A. Mook, J. Henk, I. Mertig, und O. A. Tretiakov, *Magne-
tic bimerons as skyrmion analogues in in-plane magnets*, Phys. Rev. B,
99 (6):060407(R), 2019.
226. X. Z. Yu, W. Koshibae, Y. Tokunaga, K. Shibata, Y. Taguchi, N. Nagaosa,
und Y. Tokura, *Transformation between meron and skyrmion topological
spin textures in a chiral magnet*, Nature, **564** (7734):95, 2018.
227. H. Huang, S. J. Lee, B. Kim, B. Sohn, C. Kim, C. C. Kao, und J. S. Lee,
Detection of the Chiral Spin Structure in Ferromagnetic SrRuO₃ Thin Film,
ACS Appl. Mater. Interfaces, **12** (33):37757, 2020.

228. L. Miao, N. J. Schreiber, H. P. Nair, B. H. Goodge, S. Jiang, J. P. Ruf, Y. Lee, M. Fu, B. Tsang, Y. Li, C. Zeledon, J. Shan, K. F. Mak, L. F. Kourkoutis, D. G. Schlom, and K. M. Shen, *Strain relaxation induced transverse resistivity anomalies in SrRuO₃ thin films*, Phys. Rev. B, **102** (6):064406, 2020.
229. L. Yang, L. Wysocki, J. Schöpf, L. Jin, A. Kovács, F. Gunkel, R. Dittmann, P. H. M. van Loosdrecht, and I. Lindfors-Vrejoiu, *Origin of the hump anomalies in the Hall resistance loops of ultrathin SrRuO₃/SrIrO₃ multilayers*, Phys. Rev. Mater., **5** (1):014403, 2021.
230. D. Kan, and Y. Shimakawa, *Defect-Induced Anomalous Transverse Resistivity in an Itinerant Ferromagnetic Oxide*, Phys. Status Solidi B, **255** (9):1800175, 2018.
231. G. Kim, K. Son, Y. E. Suyolcu, L. Miao, N. J. Schreiber, H. P. Nair, D. Putzky, M. Minola, G. Christiani, P. A. van Aken, K. M. Shen, D. G. Schlom, G. Logvenov, and B. Keimer, *Inhomogeneous ferromagnetism mimics signatures of the topological Hall effect in SrRuO₃ films*, Phys. Rev. Materials, **4** (10):104410, 2020.
232. S. Zhang, J. Zhang, Y. Wen, Y. Peng, Z. Qiu, T. Matsumoto, and X. Zhang, *Deformation of Néel-type skyrmions revealed by Lorentz transmission electron microscopy*, Appl. Phys. Lett., **116** (14):142402, 2020.
233. Z. Zhong, and P. Hansmann, *Band Alignment and Charge Transfer in Complex Oxide Interfaces*, Phys. Rev. X, **7** (1):011023, 2017.
234. J. Nichols, X. Gao, S. Lee, T. L. Meyer, J. W. Freeland, V. Lauter, D. Yi, J. Liu, D. Haskel, J. R. Petrie, E.-J. Guo, A. Herklotz, D. Lee, T. Z. Ward, G. Eres, M. R. Fitzsimmons, and H. N. Lee, *Emerging magnetism and anomalous Hall effect in iridate–manganite heterostructures*, Nat. Commun., **7** (1):12721, 2016.

Danksagung

Ohne die Unterstützung vieler hilfsbereiter Personen wäre die erfolgreiche Anfertigung dieser Arbeit nicht möglich gewesen. Insbesondere möchte ich den folgenden Personen meinen herzlichen Dank aussprechen:

Prof. Dr. Philipp Gegenwart danke ich für die intensive Betreuung während meiner Promotion und seinem Vertrauen, dass mir die Freiheiten gab bei meiner Forschung eigene Ideen zu verfolgen.

Prof. Dr. Manfred Albrecht für die Bereitschaft das Koreferat meiner Arbeit zu übernehmen.

Prof. Dr. Vasily Moshnyaga für die hilfreichen Diskussionen mit ihm als MAD-Experten. Mit seiner fröhlichen Art hat er einen bei Problemen immer neu motivieren können.

Prof. Dr. Konrad Samwer für die Möglichkeit eine der MAD-Anlagen aus Göttingen auszuleihen, bis in Augsburg die neue Depositionsanlage aufgebaut war. Ohne wäre die Fertigstellung dieser Arbeit nicht so problemlos abgelaufen.

Prof. Dr. Ulrich Eckern und **Priv.-Doz. Dr. Hans-Albrecht Krug von Nidda** für ihre Teilnahme in der Prüfungskommission meiner Disputation.

Dr. Anton Jesche für die Hilfe bei den Magnetisierungsmessungen und die anschließenden Diskussionen.

Robert Gruhl für die Untersuchungen der hier vorgestellten Proben an Querschnittslamellen mit dem TEM an der Universität Augsburg und **Dr. Sebastian Schneider** für die Untersuchung der in-plane Kristallstruktur der Proben mit dem TEM an der Technischen Universität Dresden.

Prof. Dr. Rossitza Pentcheva und ihrer Arbeitsgruppe für die Berechnung der Bandstruktur zu den $[(\text{SrRuO}_3)_5/(\text{SrIrO}_3)_2]_k$ Dünnschichten.

Prof. Dr. István Kézsmárki für die anregenden Diskussionen über Skyrmionen. Dadurch hat sich mein Verständnis über diese magnetischen Strukturen intensiviert.

Meinem Bruder **Dr. Sebastian Esser** dafür, dass er mir immer mit Rat und Tat zur Seite stand, und er auch nach seinem Wechsel in die Industrie sich die Zeit genommen hat, mit mir über meine Messungen zu diskutieren.

Dr. Marius Keunecke, Vitaly Bruchmann-Bamberg und **Dr. Sebastian Merten** für die interessanten Diskussionen und privaten Gespräche auch nach meinem Wechsel von Göttingen nach Augsburg.

Alexander Herrnberger in Augsburg und **Carsten Mahn** aus Göttingen die mir bei allen technischen Fragen rund um den Aufbau der MAD-Anlage hilfreich beigestanden haben.

Meinen Bürokollegen **Sebastian Bachus, Andreas Schneider, Maximilian Uhl** und **Andreas Wörl** für die angenehme Arbeitsatmosphäre und den zahlreichen (nicht-)wissenschaftlichen Diskussionen, auch wenn eu-er schwäbisch anfangs nicht zu hundert Prozent verstanden habe.

Christine Schäfer und **Birgitta Eisenschmid** für die Unterstützung bei allen verwaltungstechnischen Fragen.

Klaus Wiedenmann für die Hilfe bei allen computerrelevanten Fragen.

Allen **Mitgliedern** und **Ehemaligen** des Lehrstuhls für Experimentalphysik VI für die freundliche Aufnahme in Augsburg und die ungezwungene Arbeitsatmosphäre.

Zum Schluss möchte ich meinen ganz besonderen Dank meinen Eltern aussprechen, die mir zum einen das Studium erst ermöglicht und mich jederzeit unterstützt haben.